T H E S E

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE DE PARIS - SUD
CENTRE D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR 3ème CYCLE

SPECIALITES : PHYSIQUE ATOMIQUE ET MOLECULAIRE
OPTIQUE QUANTIQUE

par

Bertrand CARRE

SUJET : ETUDE DE L'IONISATION D'UNE VAPEUR DE SODIUM DENSE EN PRESENCE D'UN RAYONNEMENT LASER RESONNANT INTENSE

Soutenue le 23 mars 1982 devant la Commission d'Examen

MM.	J.	DURUP	Président
	F.	WUILLEUMIER	
	J.C.	GAUTHIER	Examinateurs
	C.	MANUS	
	G.	SPIESS	

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41543515_0034

T H E S E

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE DE PARIS - SUD
CENTRE D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR 3ème CYCLE

SPECIALITES : PHYSIQUE ATOMIQUE ET MOLECULAIRE
OPTIQUE QUANTIQUE

par

Bertrand CARRE

SUJET : ETUDE DE L'IONISATION D'UNE VAPEUR DE SODIUM DENSE EN PRESENCE D'UN RAYONNEMENT LASER RESONNANT INTENSE

Soutenue le 23 mars 1982 devant la Commission d'Examen

MM.	J.	DURUP	Président
	F.	WUILLEUMIER	
	J.C.	GAUTHIER	Examinateurs
	C.	MANUS	
	G.	SPIESS	

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur J. DURUP qui a bien voulu assumer la direction de cette thèse.

Je remercie Monsieur F. WUILLEUMIER et ses collaborateurs de la communication qu'ils nous ont faite de leurs travaux, des discussions fructueuses qu'ils ont suscitées et de la collaboration à laquelle ils nous ont maintenant invités autour de ce sujet de recherche.

Je remercie Monsieur J.C. GAUTHIER de l'intérêt qu'il a porté à notre travail.

Je remercie Monsieur C. MANUS, Chef du Service de Physique des Atomes et des Surfaces, de m'avoir accueilli dans son service en me permettant d'y préparer cette thèse, et de l'attention avec laquelle il a suivi le déroulement de notre recherche.

Je remercie Monsieur G. WATEL de m'avoir offert d'effectuer ce travail dans son groupe de recherche et de l'avoir favorisé à maintes reprises.

Je remercie particulièrement Monsieur G. SPIESS qui a constamment accompagné la préparation de cette thèse , de ses commentaires, de ses conseils et de ses fécondes suggestions, Messieurs F. ROUSSEL et P. BREGER qui ont supporté une part considérable du travail expérimental et m'en ont enseigné les méthodes.

Je remercie enfin Madame CHAUCHON qui a dactylographié ce mémoire, Madame GIACOMINI et Madame DEPREZ qui en ont assisté la réalisation matérielle.

P L A N

I - INTRODUCTION

II - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

II.A - La cellule

II.B - Le laser

II.B.1 - Description générale

II.B.2 - Analyse de la raie spectrale

1) Enveloppe de la distribution spectrale d'intensité non absorbée

2) Résolution de la structure en modes

3) Conclusion de cette étude

II.B.3 - Analyse de la tache focale du laser

II.B.4 - Dépendance temporelle de l'impulsion du laser

1) Caractéristiques

2) Troncature de l'impulsion du laser

III - METHODES EXPERIMENTALES ET MESURES PRELIMINAIRES

III.A - Saturation de la transition 3s-3p

III.B - Mesure de l'intensité de saturation de la transition 3s-3p

III.B.1 - Géométrie de la région d'interaction

III.B.2 - Principe de la mesure

III.B.3 - Etude intermédiaire du profil d'absorption

III.B.4 - Formulation quantitative de la mesure de fluorescence

III.B.5 - Résultats expérimentaux

III.C - Collection des ions et mesures

III.C.1 - Mesure de charge
III.C.2 - Mesure analogique
III.C.3 - Correspondance entre les deux mesures

III.D - Mesure de la température électronique

IV - RESULTATS EXPERIMENTAUX ET INTERPRETATION

IV.A - Présentation générale
IV.B - Région des faibles densités

IV.B.1 - Analyse des mesures du nombre total d'ions

1) Variation de N_{ion} en fonction de $\underline{n}_o$
2) Variation de N_{ion} en fonction de $\bar{I}$

IV.B.2 - Estimation d'un taux effectif d'ionisation
IV.B.3 - Développement expérimental

IV.C - Brefs résultats de l'analyse en masse des ions

IV.C.1 - Description de la méthode de temps de vol
IV.C.2 - Résultats

1) Région I
2) Région II

IV.D - Région des fortes densités

IV.D.1 - Analyse des mesures du nombre total d'ions
IV.D.2 - Energie moyenne des électrons
IV.D.3 - Evolution temporelle du signal d'ions

IV.E - Essai d'interprétation des résultats

IV.E.1 - Mécanismes collisionnels en chaîne
IV.E.2 - Principales étapes du processus d'ionisation

1) Saturation de la transition 3s-3p
2) Etape d'ensemencement
3) Etape intermédiaire
4) Etape finale

IV.E.3 - Sections efficaces - Analyse quantitative

1) Collisions superélastiques
2) Ionisation par impact électronique
3) Modèle quantitatif

3.1) Rappels sur le modèle LIBORS
3.2) Analyse quantitative simplifiée

IV.E.4 - Analyse de la distribution en énergie des électrons dans une expérience récente

V - CONCLUSION

- APPENDICE 1 - Calcul du taux de pompage de la transition 3s-3p.
- APPENDICE 2 - Etude du courant d'ions.
- APPENDICE 3 - Analyse simplifiée de l'ionisation par impact électronique.
- REFERENCES

I - INTRODUCTION

De nombreux travaux expérimentaux publiés dans les dernières années ont montré l'intérêt que suscitent les phénomènes d'ionisation d'une vapeur alcaline, en présence d'un rayonnement résonnant intense. LUCATORTO et Mc ILRATH / 1 / ont en effet observé l'ionisation presque totale d'une vapeur de sodium dense ($n_o \geq 10^{15}$ at/cm^3) par un rayonnement laser intense (10^5 W/cm^2) accordé sur la transition 3s-3p. Ils ont montré qu'il était possible de créer un plasma complètement ionisé, dense, en un temps très court (< 1 µs) par un couplage efficace de l'énergie du rayonnement au milieu atomique. MEASURES / 2a / fit le premier l'hypothèse d'un rôle prépondérant de l'ionisation par impact électronique de l'état résonnant (3p), qui conduit à une ionisation en chaîne de la vapeur et à la formation d'une avalanche électronique. MEASURES supposait conjointement que les électrons gagnaient l'énergie nécessaire pour ioniser l'état (3p) (3.03 eV) dans des collisions inélastiques, dites "superélastiques" avec l'état (3p). Ce modèle faisait donc jouer un rôle essentiel à la saturation de la transition 3s-3p par le rayonnement. Les résultats expérimentaux de ROUSSEL et coll. / 3 a,b /, STACEWICZ / 4 / ont confirmé l'interprétation de MEASURES en mettant en évidence l'existence d'électrons "chauds", ayant subi une ou plusieurs collisions superélastiques dans la région d'interaction.

Les résultats montrent également le comportement exponentiel du taux d'ionisation, en fonction du temps ou de la densité atomique, caractéristique de l'avalanche électronique.

Plus récemment, LE GOUËT et coll. / 5 / ont pu faire l'analyse précise de la distribution en énergie des électrons dans un milieu excité par un rayonnement continu. Ils démontrent que les populations d'électrons "chauffés" respectivement par une, deux et même trois collisions superélastiques sont observables dans la région d'interaction.

Si l'existence de mécanismes d'ionisation par impact électronique est maintenant établie à haute densité, en revanche, la formation des premiers électrons qui "amorcent" l'ionisation en cascade dans le milieu, fait toujours l'objet de nombreuses hypothèses. Les mécanismes d'ensemencement sont, dans le cas d'une expérience en régime pulsé, seuls observables à faible densité ($n_o < 10^{13}$ at/cm^3). Dans cette région, BEARMAN et LEVENTHAL / 6 / ont attribué la formation des électrons primaires à l'ionisation associative de deux atomes dans l'état résonnant. D'autres mécanismes ont été proposés : ionisation multiphotonique des atomes et des molécules, ionisation associative et Penning qui peuvent être assistées par le rayonnement, POLAK-DINGELS et coll. / 7 /, WEINER et POLAK-DINGELS / 8 /, / 9 / ; photoionisation et ionisation collisionnelle d'états hautement excités, formés par collision dans la vapeur / 5 /. Nous retiendrons qu'il est encore difficile de connaître l'importance relative des mécanismes avancés.

Nous présentons dans ce travail les mesures du taux d'ionisation d'une vapeur de sodium, dont la densité est comprise entre 10^{12} et 10^{15} at/cm^3, excitée par un laser pulsé accordé à la résonance $3S_{1/2} - 3P_{1/2, 3/2}$, d'intensité (densité de puissance) comprise entre 5×10^3 et 5×10^5 W/cm^2. Dans le large domaine de densité exploré, nous distinguerons deux régimes d'ionisation de la vapeur : le régime dit "d'ensemencement" et le régime d'ionisation en cascade, par impact électronique.

Nous ne chercherons qu'à mettre en évidence la nature collisionnelle du régime d'ensemencement, qui fait l'objet de différents hypothèses déjà citées.

Nous ferons une analyse plus détaillée du régime d'ionisation en cascade. Nous comparerons nos résultats aux paramètres calculés en faisant le choix d'un modèle quantitatif simple. Nous pourrons vérifier que les traits caractéristiques du modèle sont bien illustrés par nos résultats. Nous conclue-rons cette étude en commentant l'expérience récente de LE GOUËT et coll./ 5 /, qui apporte une preuve expérimentale directe de notre interprétation.

Une première partie de ce travail a été consacrée à la définition de conditions expérimentales telles que :

- le pompage de la transition 3s-3p par le rayonnement ;
- l'absorption du rayonnement par la vapeur dense.

Nous présenterons également les techniques de mesure des divers paramètres, nombre d'ions, énergie moyenne des électrons, ... qui ont été utilisées.

L'ensemble de ces résultats a fait l'objet de plusieurs publications / 3 a, b, c, d /.

II - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Un schéma d'ensemble du dispositif expérimental est présenté en figure 1.

- Principe général de l'expérience

Le but de l'expérience est d'étudier l'ionisation d'une vapeur de sodium, excitée à la résonance $3S_{1/2} - 3P_{1/2,3/2}$ par une impulsion de laser. Les ions créés sont collectés selon deux modes distincts :

i) Le courant total $Na^+ + Na_2^+$ donne un signal analogique mesuré sur un oscilloscope rapide.

ii) Le courant total $Na^+ + Na_2^+$ charge un électromètre et on mesure une charge totale (nombre d'ions) créée pendant l'impulsion du laser.

Enfin, les résultats préliminaires de l'analyse en masse des ions par une méthode de temps de sol sont rapportés.

Les variations du nombre total d'ions N_{ion} sont étudiées :

- en fonction de la densité atomique n_o, variant entre 10^{12} et 10^{15} at/cm^3, pour une intensité $\bar{I}$ fixée ;
- en fonction de $\bar{I}$ variant entre 5×10^3 et 5×10^5 W/cm^2 pour n_o fixée.

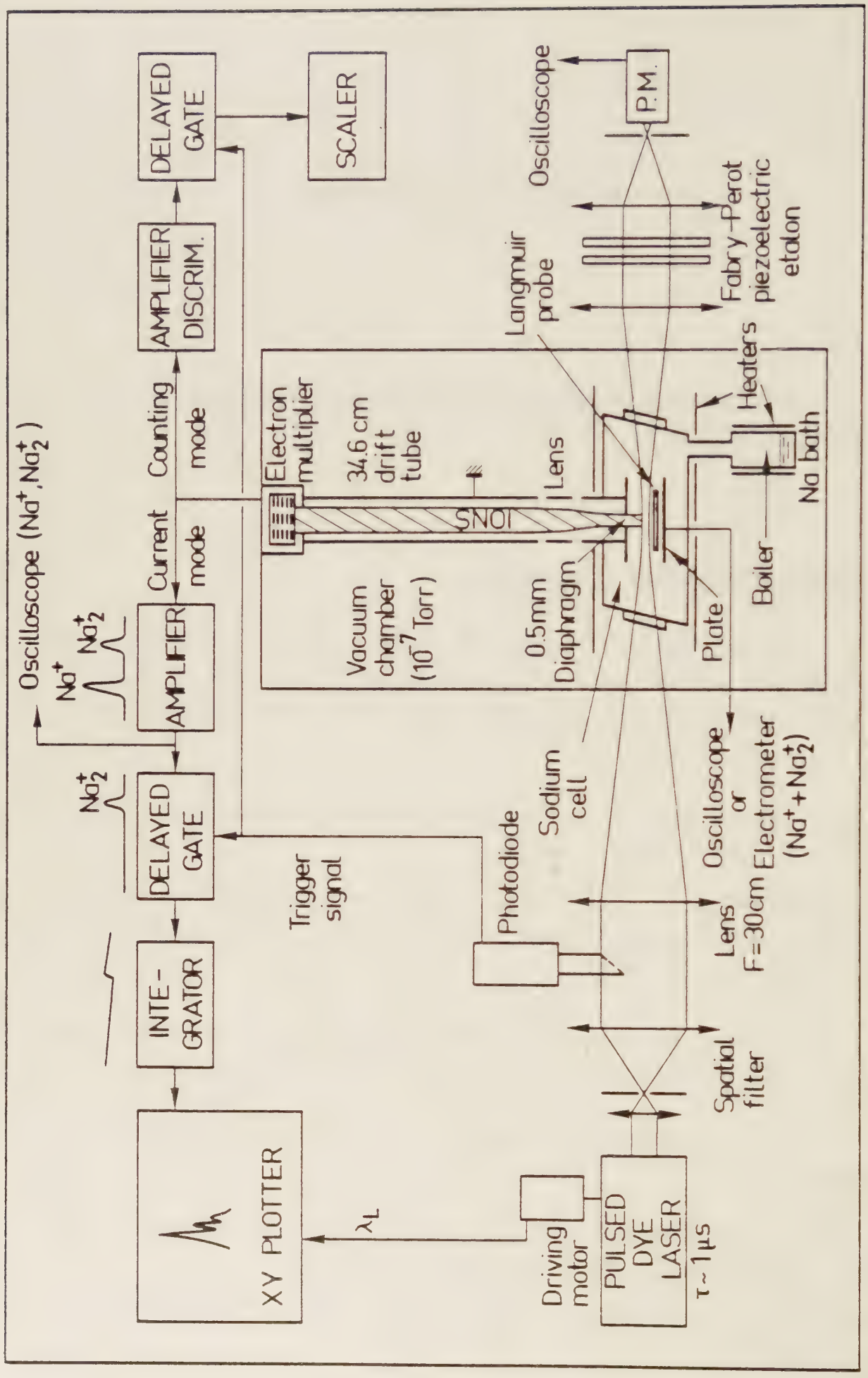


Figure 1 - Dispositif expérimental.

De ces mesures et de celle de l'énergie moyenne des électrons créés, on déduit le type de mécanisme d'ionisation observé.

II.A - Cellule expérimentale

Le four à sodium est placé dans une enceinte extérieure où la pression est 10^{-7} Torr. La cellule est un évidement cylindrique de longueur 10 cm, de diamètre 2 cm, fermé par deux hublots de saphir. Le faisceau du laser est aligné dans l'axe de la cellule. Des brides latérales permettent le passage des éléments de détection. Cet ensemble est porté à la température $T_2 \approx 300°C - 400°C$ afin d'éviter la condensation sur les parois. Le sodium est chargé dans une chaudière adjacente, à la température $T_1 < T_2$, communiquant avec la cellule. L'écart $(T_2 - T_1)$ est assez faible pour que le même équilibre thermodynamique existe dans la chaudière et dans la cellule. La pression dans la chaudière est celle de la vapeur saturante :

$$p_1 = p_s\ (T_1) = n_1\ KT_1$$

Nous écrirons que la densité dans la cellule est égale à n_1.

La densité des monomères et dimères en fonction de T_1 a été calculée d'après TIEDE / 9 / et LAPP et HARRIS / 10 /.

TABLEAU 1

Densité des monomères et des dimères dans la vapeur saturante en fonction de T°C d'après TIEDE / 9 / et LAPP et HARRIS / 10 /

T°C	100	150	200	250	300	350
n (cm^{-3}) mono	2.2×10^{9}	1.1×10^{11}	2.5×10^{12}	2.9×10^{13}	2.2×10^{14}	1.2×10^{15}
n(cm^{-3}) dimère	$\sim 10^{6}$	1.6×10^{8}	8×10^{9}	1.9×10^{11}	2.5×10^{12}	10^{13}

II.B - Le Laser

II.B.1 - Description générale

Le laser sert à exciter les transitions $3S_{1/2} - 3P_{1/2}$ (λ = 5 892 Å), $3S_{1/2} - 3P_{3/2}$ (5 891 Å).

C'est un laser à colorant (Chromatix CMX 4) pulsé, pompé par flash, utilisant la Rhodamine 6 G en solution dans le méthanol. L'énergie des impulsions est de 1 mJ délivrée en 1 µs. Les taux de répétition sont de 5 Hz, 10 Hz et 25 Hz. Un diaphragme intra-cavité permet de sélectionner le mode spatial TEM_{oo}. L'accord en longueur d'onde se fait au moyen d'un filtre de Lyot intra-cavité.

Le système optique focalisant le faisceau dans la cellule comprend :

i) un télescope fixe ;

ii) deux systèmes distincts de lentilles focalisant le faisceau au diamètre de 0,2 mm et 0,54 mm.

II.B.2 - Analyse de la raie spectrale du laser

Nous décrivons les techniques qui permettent de déterminer, d'une part, la distribution spectrale d'intensité non absorbée (enveloppe et structure modale de la distribution), d'autre part, les profils d'absorption en présence de vapeur.

II.B.2.1 - Enveloppe de la distribution spectrale d'intensité non absorbée

L'enveloppe $A(\omega)$ de la distribution spectrale est liée à la transformée de Fourier de l'intensité instantanée $I(t)$. La largeur à mi-hauteur de cette enveloppe est alors 70 GHz. On la détermine grâce au montage expérimental suivant, utilisant un interferomètre Fabry-Perot piézoélectrique :

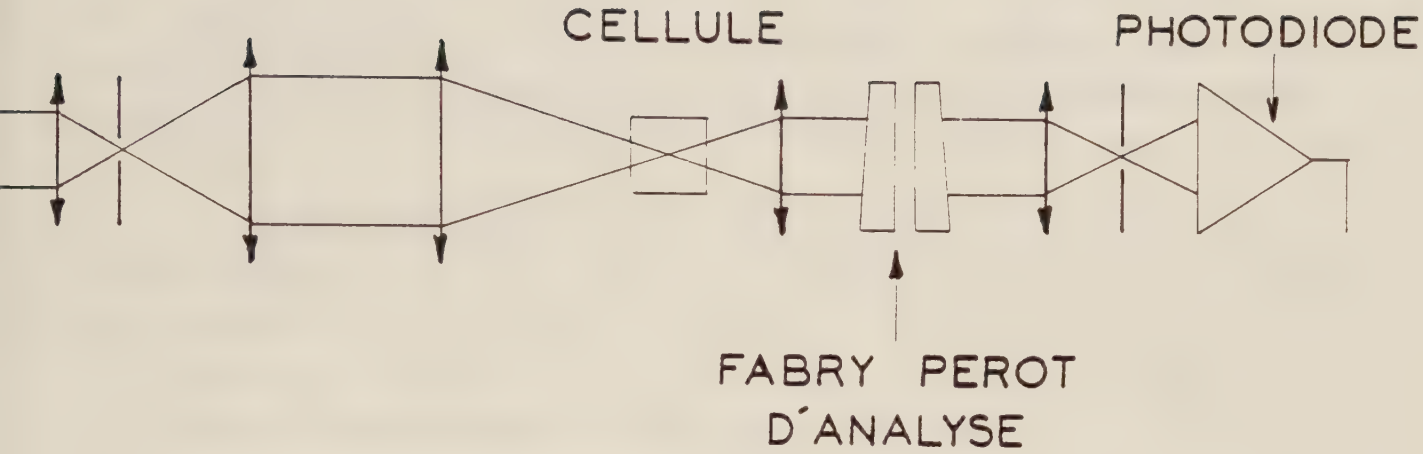


Schéma du montage d'analyse interférométrique.

Le faisceau parallèle éclaire la face d'entrée du Fabry-Pérot d'épaisseur e, de finesse F = 50. L'intervalle spectral libre $\frac{c}{2e}$, qui sépare deux ordres d'interférence, est supérieur à la largeur estimée de la raie. L'image à l'infini des figures d'interférence est diaphragmée de façon à ne laisser passer que l'ordre 0 (au centre de l'image). L'intensité du signal transmis est mesurée par une photodiode sensible. On balaie la distribution spectrale en variant lentement l'épaisseur du F.P. Le taux de répétition élevé des tirs pour une vitesse de balayage faible permet un échantillonnage précis de la distribution. La structure en mode n'est pas résolue. On vérifie que la distribution spectrale d'intensité est Gaussienne, de largeur à mi-hauteur 70 GHz.

II.B.2.2 - Résolution de la structure en modes

La raie du laser a en fait une structure en modes. L'intervalle entre deux modes ou groupes de modes est donné

approximativement par $\Delta\nu = \frac{c}{2l}$, l : longueur de la cavité. Quand le miroir de sortie est à faces parallèles, les modes se groupent en plusieurs raies à intervalles de $\Delta\nu = \frac{c}{2l} \simeq 200$ MHz pour le présent laser.

Pour vérifier expérimentalement ces caractéristiques, on réduit le nombre de modes (groupes de modes) en introduisant dans la cavité optique un F.P. : e = 0,8 mm, F = 15. La largeur de la raie totale est de 2,7 GHz et l'intensité est concentrée dans les modes centraux. Dans le montage décrit précédemment, l'intervalle spectral libre du F.P. d'analyse séparant deux ordres d'interférence est 2,1 GHz et sa résolution $\Delta\nu$ = 43 MHz. Un télescope forme l'image des ordres d'interférence en anneau 0 et 1 sur un film sensible. L'analyse du film au photodensitomètre montre l'existence de 10 groupements de modes environ dans la raie réduite.

Si D_o, D'_o et D_1, D'_1 sont les diamètres des anneaux d'ordres 0 et 1 correspondant à deux groupes de modes consécutifs, l'intervalle entre ces groupes de modes est :

$$\Delta\nu = (\varepsilon - \varepsilon') \frac{c}{2e}$$

$$\varepsilon = \frac{D_1^2}{D_1^2 - D_o^2}$$

$$\varepsilon' = \frac{D_1'^2}{D_1'^2 - D_o'^2}$$

BORN et WOLF / 11 /.

On retrouve que l'intervalle entre deux groupes de modes est 200 MHz environ, la largeur d'un groupement est inférieure à la résolution du F.P. = 43 MHz.

II.B.2.3 - Conclusion

La raie réduite est un système de 10 groupes de modes (que nous appelons directement modes) régulièrement espacés de 200 MHz et de largeur inférieure à 43 MHz. Par extension, la raie totale de 20 MHz sera considérée comme un ensemble de 350 modes, espacés de 200 MHz, de largeur < 40 MHz, c'est-à-dire inférieure à la largeur naturelle : 63 MHz. L'enveloppe de la distribution spectrale d'intensité est Gaussienne.

Plus simplement nous ferons l'hypothèse de modes monochromatiques $\nu \pm n = \nu_o \pm n\delta$, δ = 200 MHz, indépendants (phases non corrélées) d'intensité $I_n = \exp [- (n/175)^2 \text{ Log } 2]$.

II.B.3 - Analyse de la tache focale du laser

La tache focale du laser a été étudiée en l'absence de vapeur à la hauteur de la région d'interaction. L'image d'une section droite du faisceau très atténué est formée sur un film photographique. La transmission du film est proportionnelle à l'intensité dans le domaine considéré. L'analyse photodensitométrique montre que la tache a une symétrie de révolution et que le profil radial est Gaussien (mode TEM_{oo}). La largeur du profil radial à l'amplitude $1/e^2$ est pour les deux systèmes de focalisation : 0,2 et 0,54 mm. Ces diamètres sont déterminés par les aberrations des lentilles.

Nous représentons la distribution radiale d'intensité totale, somme des intensités dans chaque mode, en l'absence de vapeur par l'expression indépendante de l'abscisse z sur l'axe de propagation :

$$I(r) = I_o \, e^{- 2 r^2 / r_o^2}$$

$2 r_o$ = 0,2 mm ou 0,54 mm.

II.B.4 - Dépendance temporelle de l'impulsion du laser

II.B.4.1 - Caractéristiques

Reprenant la forme du paragraphe précédent, on doit en fait écrire, tenant compte de la dépendance temporelle de I :

$$I(r,t) = I_o(t)\, e^{-2 r^2/r_o^2}$$

$$= I_n\, f(t)\, e^{-2 r^2/r_o^2}$$

La photographie ci-dessous, figure 2, prise à l'oscilloscope, présente le profil temporel de la puissance instantanée du rayonnement.

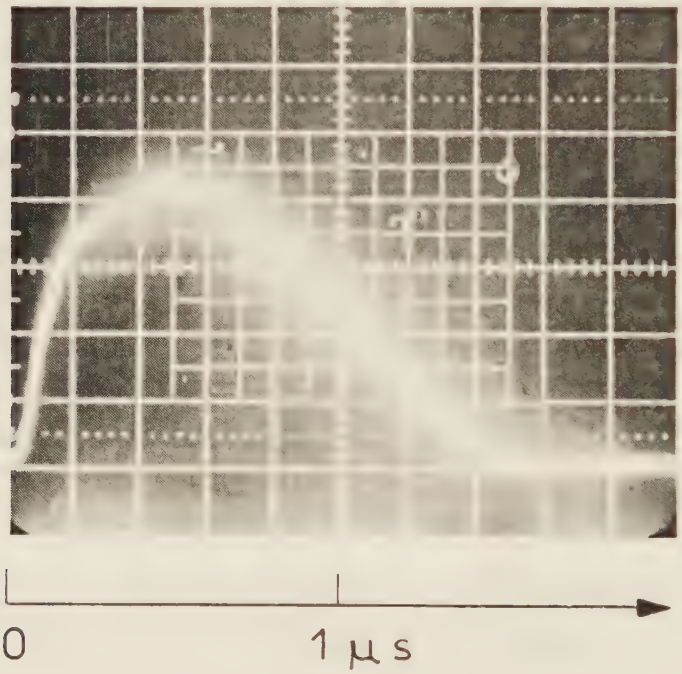


Figure 2 - Profil temporel de l'impulsion du laser.

La relation entre le maximum de l'intensité instantanée $I_o(t)$ que nous considérerons dans la suite et l'énergie W mesurée expérimentalement, peut être exprimée quantitativement :

$$I_o^{max} = 2{,}24 \quad \frac{W\ (\text{Joule})}{\pi\, r_o^2\, \tau}$$

- Le facteur 2,24 est déterminé expérimentalement par planimétrie, à partir de la figure 2.
- τ est la durée de l'impulsion à mi-hauteur : $\tau = 10^{-6}$ s.
- Nous conviendrons d'appeler $\bar{I}$ la quantité $\frac{W}{\pi r_o^2 \tau}$.

II.B.4.2 - Variations de l'intensité

On fait varier l'intensité au moyen de filtres neutres qui divisent par un facteur constant la distribution radiale I(r). Ce profil I(r) reste gaussien après atténuation.

II.B.4.3 - Troncature de l'impulsion du laser

L'impulsion du laser peut être tronquée dans le temps au moyen d'une cellule de Pockels, à un instant t variable après le début de l'impulsion. L'intensité résiduelle est inférieure à 5 %. L'intensité moyenne de l'impulsion du laser tronqué sur l'intervalle [o,t] est sensiblement constante quand t varie entre 100 ns et 1 µs. Cette troncature permet de suivre le développement temporel des signaux d'ions.

III - METHODES EXPERIMENTALES ET MESURES PRELIMINAIRES

III.A - Saturation de la transition $3S_{1/2} - 3P_{1/2,3/2}$

Nous présentons dans ce paragraphe le calcul du régime stationnaire de pompage de la transition 3s-3p par le rayonnement multimode décrit précédemment. Ce calcul est développé en Appendice 1.

III.A.1 - Description du rayonnement (rappel)

Le champ électrique total E est la somme de modes monochromatiques, indépendants, d'amplitude E_n constante, de fréquence $\omega_n = \omega_o \pm n\delta$, δ = 200 MHz (ω_o : fréquence d'absorption du système atomique au repos), de polarisation linéaire $\hat{\varepsilon}$. Il y a N = 350 modes ; l'intensité dans le mode n est :

$$I_n = I_o \exp \left[- (n/175)^2 \, \mathrm{Log}^2 \right]$$

Une représentation plus adéquate doit tenir compte des fluctuations d'amplitude et de phase de chaque mode.

III.A.2 - Description du système atomique

Le système atomique est un système à 2 niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$, couplés par le rayonnement :

$$|1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ |(3s)\ j = 1/2,\ m_j = 1/2\rangle + |(3s)\ 1/2,\ -1/2\rangle \right\}$$

$$|2\rangle_{1/2,3/2} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left\{ |(3p)\ j = \left|\begin{matrix}1/2\\3/2\end{matrix}\right.,\ m_j = 1/2\rangle + |(3p)\ \left|\begin{matrix}1/2\\3/2\end{matrix}\right.,\ -1/2\rangle \right\}$$

Quand l'atome excité est dans le niveau j = 3/2, on néglige les transitions entre sous-niveaux de structure fine.

Le formalisme utilisé en Appendice 1 a été développé par Mc ILRATH et CARLSTEN / 12 /.

III.A.3 - Conclusion

Le rapport des densités $[n_{3p}]/n_o$ en fonction de l'intensité totale I est présenté en figure 3, pour deux valeurs du rapport T_2/T_1 : T_1, temps de relaxation des populations ; T_2, temps de relaxation des cohérences, SMITH / 13 /.

A la saturation, $[n_{3p}]/n_o = 1/2$ pour des intensités $I_S = 50$ W/cm^2 ($T_2 = T_1/10$) et $I_S = 3 \times 10^2$ W/cm^2 ($T_2 = T_1$). Le calcul est en bon accord avec celui de GELTMAN (1981) / 14 a /. Au vu de ces courbes, on peut représenter avec une bonne approximation $n_{3p}(I)$ par l'expression :

$$n_{3p}(I) = \frac{n_o}{2} \frac{1}{1 + I_S/I}$$

I_S, dans cette formule, est un paramètre ajustable.

Note : L'intensité totale I est une fonction de r et de t. $n_{3p}(I)$ est alors la densité instantanée dans la couronne 2π rdr.

III.B - Mesure de l'intensité de saturation de la transition 3s-3p

Nous cherchons à déterminer expérimentalement le paramètre I_S dans l'expression de $n_{3p}(I)$ précédente, par une mesure de l'intensité de fluorescence émise par la région d'interaction.

III.B.1 - Géométrie de la région d'interaction

La région d'interaction (exactement : de détection) est définie au centre de la cellule par le faisceau cylindrique du laser, sur une longueur de 1 cm. Elle est située à 5 cm des hublots.

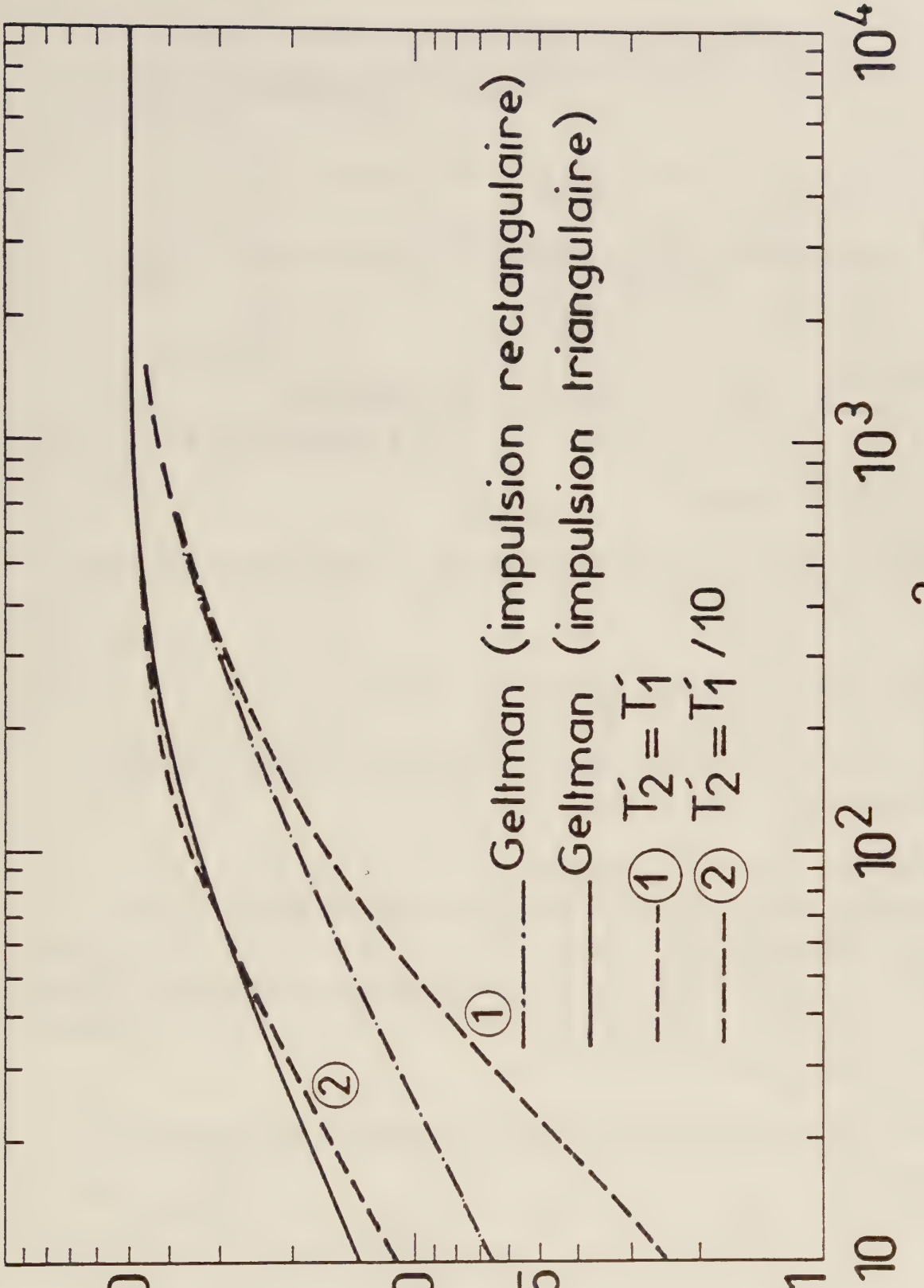


Figure 3 : Taux de pompage de la transition 3s-3p par le rayonnement multimode. Les courbes 1 et 2 (notre calcul) se comparent de façon satisfaisante aux courbes calculées par GELTMAN (14a).

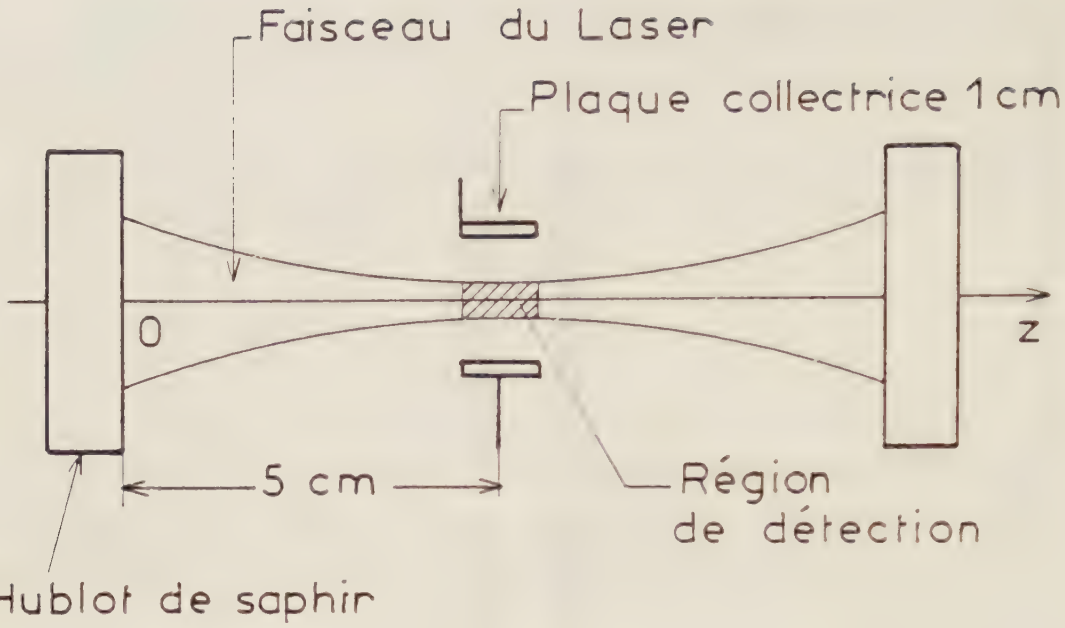


Schéma de la géométrie du faisceau et de la région d'interaction.

III.B.2 - Principe de la mesure

1) A n_o fixée, la puissance émise en fluorescence croît avec l'intensité I_o, par le fait de :

- l'augmentation du taux de pompage 3s-3p ;
- la dilatation de la distribution radiale d'intensité (usage de filtres neutres)

l'étude des variations de P_F avec I_o permet de déterminer I_S.

2) P_F varie avec n_o à I_o fixée :

- le nombre de photons émis par unité de temps est proportionnel à n_o ;
- le piégeage de radiation, dépendant de n_o, réduit P_F émise par la région d'interaction.

3) Dans la vapeur, le faisceau est absorbé sur une distance de 5 cm avant d'atteindre la région d'interaction. Il faut tenir compte de cette absorption dans la détermination de P_F.

Pour étudier les variations de P_F avec I_o et en déduire I_S, nous nous placerons donc à faible densité de vapeur, où l'absorption est faible.

Nous commençons par l'étude rapide du profil d'absorption.

III.B.3 - Etude intermédiaire du profil d'absorption

Le dispositif d'analyse interférométrique décrit en II.B.2 permet d'obtenir le profil d'absorption de la raie dans la vapeur. La largeur $\Delta\nu_a$ de ce profil (à la sortie de la cellule) varie avec la densité n_o.

TABLEAU 2

Largeur expérimentale du profil d'absorption en fonction de n_o

n_o (cm^{-3})	10^{12}	10^{13}	10^{14}	10^{15}
$\Delta\nu_a$	1,9 GHz	9 GHz	40 GHz	70 GHz

A faible densité (10^{12} cm^{-3}) $\Delta\nu_a$ est égale à la largeur Doppler $\sim$ 2 GHz. A 10^{15} cm^{-3}, l'intensité est absorbée sur l'ensemble de la distribution spectrale. A n_o fixée, $\Delta\nu_a$ est indépendante de $\bar{I}$ entre 5×10^3 W/cm^2 et 5×10^5 W/cm^2.

Soit ΔI_L l'intensité totale absorbée après 5 cm de parcours ; $\Delta I_L \frac{\Delta\nu_a}{\Delta\nu_L}$ peut être assimilée à l'intensité absorbée dans un mode unique de fréquence ω_o, d'intensité égale à l'intensité totale du rayonnement multimode (nous supposons que $\Delta\nu_a$ varie peu à partir de l'abscisse z = 5 cm) :

$$\Delta I_L \frac{\Delta\nu_a}{\Delta\nu_L} = \Delta I_{\text{monomode}}$$

Dans le cas de l'absorption saturée, $\Delta I_{monomode}$ est égale à $\hbar \omega_o A_{3p-3s} \frac{n_o}{2} l$ (A_{3p-3s} : coefficient d'émission spontanée ; l : longueur de parcours).

Soit :

$$\Delta I_L = \frac{\Delta\nu_L}{\Delta\nu_a} \Delta I_{monomode} = 5,27 \times 10^{-11} \text{ (W.cm)} \frac{\Delta\nu_L}{\Delta\nu_a} n_o$$

TABLEAU 3

Intensité totale absorbée en fonction de n_o

n_o (cm^{-3})	10^{12}	10^{13}	10^{14}	10^{15}
ΔI_L W/cm^2	2×10^3	4×10^3	9×10^3	5×10^4

III.B.4 - Formulation quantitative de la mesure de fluorescence

Soit Oz l'axe de pénétration du faisceau dans la vapeur. La région d'interaction est située entre les abscisses $z_1 = 4,5$ cm et $z_2 = 5,5$ cm. En $z = 0$, le faisceau a un profil Gaussien :

$$I(r, z = 0) = I_o e^{-2r^2/r_o^2}$$

Dans la couronne 2π rdr, la variation de l'intensité avec z est décrite par les deux équations :

$$\frac{dI}{dz}(r,z) = -\hbar \omega_o \frac{\Delta\nu_L}{\Delta\nu_a} A_{3p-3s} n_{3p}(r,z)$$

$$n_{3p}(r,z) = \frac{n_o}{2} \frac{1}{1 + I_S/I(r,z)}$$

Pour résoudre très simplement ce système, nous ferons les hypothèses suivantes :

i) I_o est grande devant I_S (estimée de 3×10^2 W/cm^2) et devant ΔI_L ($\sim 10^3$ W/cm^2 quand $n_o = 10^{12}$ at/cm^3).

ii) Nous admettrons donc que :

$$I(r,z) = I_o(r) \quad \text{quand} \quad I_o(r) > \Delta I_L$$

$$I(r,z) = 0 \quad \text{quand} \quad I_o(r) < \Delta I_L$$

Le rayon effectif r_e est défini par $I_o(r_e) = \Delta I_L$.

La puissance P_F émise par la région d'interaction entre z_1 et z_2 s'écrit :

$$P_F = -\int_{z_1}^{z_2} dz \int_o^{\infty} 2\pi\, rdr \frac{dI}{dz} = \alpha_o (z_2 - z_1) \int_o^{r_e} 2\pi\, rdr \frac{1}{1 + I_S/I_o(r)}$$

où $$\alpha_o = \hbar\, \omega_o \frac{\Delta\nu_L}{\Delta\nu_a} A_{3p-3s} \frac{n_o}{2}$$

Après intégration :

$$P_F = \alpha_o (z_2 - z_1)\, \pi\, r_o^2\, \text{Log} \frac{I_o + I_S}{I_S + \Delta I_L}$$

La variation prévue de P_F avec I_o est logarithmique.

Note : I_o est une fonction du temps, P_F est mesurée au maximum de sa variation temporelle pour une intensité $I_o(t)$ maximale.

III.B.5 - Résultats expérimentaux

Les photons émis par la région d'interaction sont collectés sur un photomultiplicateur, fonctionnant en mode analogique. La valeur moyenne de 5 mesures à faible densité,

$n_o \sim 10^{11}$ cm^{-3} est portée en figure 4. A cette densité, ΔI_L peut être négligé devant I_S et

$$P_F \equiv \text{Log}\,(1 + I_o/I_S)$$

on détermine par une méthode de moindres carrés $I_S = 2 \times 10^3$ ($\pm$ 5 x 10^2) W/cm^2. La courbe correspondante est tracée sur la figure 4. Les résultats sont en accord avec ceux de SALTER et coll. / 15 / et WIENER et POLAK-DINGELS / 8 /.

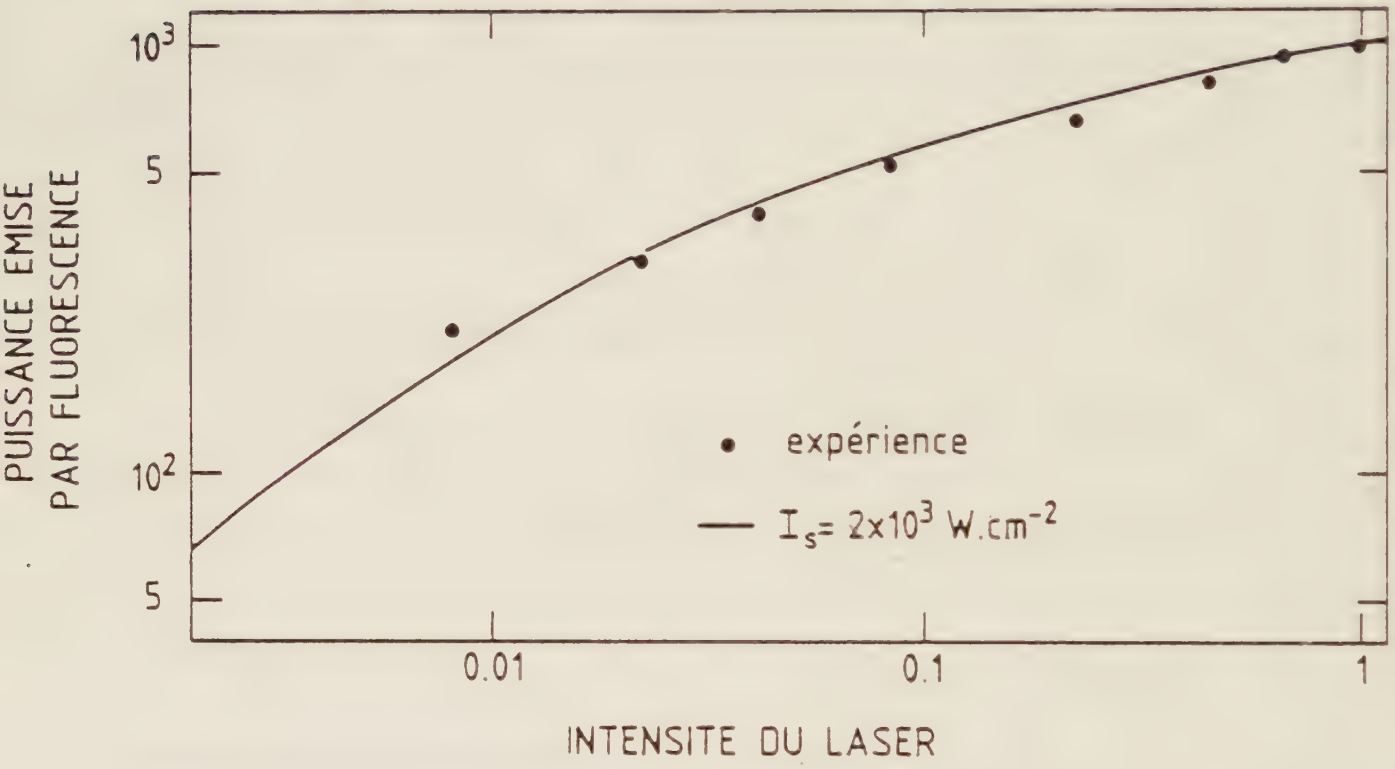


Figure 4 - Mesure expérimentale de la puissance P_F émise en fluorescence par la région d'interaction. La courbe en trait plein est calculée pour l'intensité $I_S = 2 \times 10^3$W/cm^2.

Cette déterminarion expérimentale corrige la valeur calculée $I_S = 3 \times 10^2$ W/cm^2. Elle confirme cependant que la transition 3s-3p est saturée par le laser dans le domaine d'intensité où l'on étudie l'ionisation : 5×10^3 - 5×10^5 W/cm^2.

III.C - Collection des ions et mesures

Dans tout le domaine expérimental (n_o, $\bar{I}$) on mesure le nombre total des ions $Na^+ + Na_2^+$ collectés sans analyse en masse. Le faisceau a un diamètre de 0,54 mm au centre de la cellule. Deux plaques collectrices, parallèles de part et d'autre du faisceau, distantes de 5 mm, définissent avec le faisceau une région d'interaction/détection de volume $v_{eff} = 2,3 \times 10^{-3}$ cm^3. Un champ électrique permanent de 18 V/cm entre ces plaques collecte un courant d'ions instantané i(t).

Le courant i(t) est exploité de deux manières :

III.C.1 - Mesure de charge

Quand $n_o > 10^{13}$ cm^{-3}, i(t) est assez intense pour charger un électromètre Keithley 602 pendant la durée de l'impulsion du laser (1 µs). On mesure directement le nombre d'ions N_{ion} par une mesure de charge, accumulée sur plusieurs tirs. Cette méthode permet de mesurer des charges de 10^{-12} C par impulsion du laser, correspondant à $N_{ion} = 6 \times 10^6$.

III.C.2 - Mesure analogique

Quand $n_o \sim 10^{13}$ cm^{-3}, le courant i(t) est enregistré sans intégration temporelle sur un oscilloscope rapide et on mesure sa valeur maximale relative.

Nous ferons l'hypothèse, qui peut être raisonnablement justifiée, que le courant i(t) est maximal à l'instant $t_o + t_{T.V}$; t_o est l'instant du maximum de l'impulsion du laser, $t_{T.V}$ est le

temps de vol moyen des ions Na^+/Na_2^+ jusqu'au détecteur (Na^+ et Na_2^+ sont assimilés en raison de la faible distance de vol : 2,5 mm). Considérant i comme une fonction de l'intensité instantanée de l'impulsion du laser, on peut écrire que le signal mesuré est proportionnel à i (I_{max}).

A partir des mesures simultanées I et II quand $n'_o > 10^{13}$ cm^{-3} et II quand $n_o < 10^{13}$ cm^{-3} on estimera un nombre $N_{ion}(n_o, \bar{I})$ comme suit :

$$N_{ion}(n_o,\bar{I}) = N_{ion}(n'_o,\bar{I}) \frac{i(n_o,\bar{I})}{i(n'_o,\bar{I})}$$

III.D - Mesure de la température électronique

On peut définir une température des électrons créés pour une distribution Maxwellienne des vitesses. Pour une distribution initiale des vitesses, isotrope et de même module pour tous les électrons, le temps de relaxation ou temps de thermalisation par collision $e^- - e^-$ (transfert efficace) est estimé par SPITZER / 16 / :

$$t_{th} = \frac{11,4\ A^{1/2}\ T^{3/2}}{n_e\ \text{Log}\ \Lambda}$$

$$A = \frac{1}{1823}$$

Log Λ est un paramètre donné par SPITZER.

TABLEAU 4

Temps de thermalisation des électrons en fonction de T°K et n_e, d'après SPITZER

Energie (eV)		0,1	0,5	0,8	1	2	3
T°K		772,9	3864	6183	7729	15458	23187
n_o (cm^{-3})	n_e (cm^{-3})						
10^{13}	10^{10}	7×10^{-8} s	6×10^{-7} s	10^{-6} s	2×10^{-6}	5×10^{-6}	9×10^{-6}
10^{14}	2×10^{13}	3×10^{-11}	3×10^{-10}	5×10^{-10}	10^{-9}	2×10^{-9}	4×10^{-9}
10^{15}	$2{,}5\times10^{14}$	3×10^{-12}	2×10^{-11}	4×10^{-11}	8×10^{-11}	2×10^{-10}	4×10^{-10}

Quand $n_o = 10^{13}$ cm^{-3} ($n_e = 10^{10}$ cm^{-3}) on trouve un temps de thermalisation de 1 µs, durée de l'impulsion, quand $\varepsilon_e = 0{,}8$ eV.

SPITZER note que le temps t_{th} est d'un ordre de grandeur supérieur au temps de thermalisation réel, à partir d'une distribution des vitesses non rigoureusement monocinétique. Expérimentalement, on vérifiera que l'on peut mesurer une température électronique T_e sur le domaine $n_o \geq 10^{12}$ cm^{-3}, $T_e \leq 3$ eV, au moyen d'une sonde électrostatique ou sonde de Langmuir. C'est un cylindre de 1 mm de diamètre, parallèle au faisceau, dont le bord est à 0,5 mm du bord du faisceau, de façon à éviter l'illumination de la sonde par le laser (SWIFT et SCHWAR / 17 /, CHEN / 18 /). Le diamètre de la sonde est inférieur au libre parcours moyen de l'électron quand $n_o < 10^{15}$ cm^{-3} et supérieur à la longueur de Debye ($\sim$ 0,1 mm), caractéristique des fluctuations de densité du plasma.

Le principe de la mesure est le suivant :

- La sonde est portée au potentiel V_S qui peut être inférieur ou supérieur au potentiel plasma V_p :

. quand $V_S = V_p$, le champ électrique est nul, les particules atteignent la sonde avec leur vitesse thermique. Les électrons plus rapides que les ions sont collectés préférentiellement.

. quand $V_S > V_p$, la sonde attire les électrons et repousse les ions. A la surface de la sonde, les charges négatives annulent le potentiel positif V_S. Le champ électrique est nul à l'intérieur de cette gaine de charges de faible épaisseur. On collecte un courant d'électrons thermiques dont l'intensité ne dépend pas de V_S.

. quand $V_S < V_p$, la sonde attire les ions et repousse les électrons. Seuls peuvent atteindre la sonde les électrons dont l'énergie cinétique est supérieure à $e\,(V_p - V_S)$, soit une fraction proportionnelle à :

$$\int_{e(V_p-V_S)}^{\infty} e^{-\varepsilon/KT_e}\, d\varepsilon \equiv \exp[-e(V_p - V_S)/KT_e]$$

(approximation d'une sonde plane).

Dans un diagramme semi-logarithmique, la caractéristique de sonde $i_S(V_S)$ présente une partie linéaire de pente $1/KT_e$, qui permet de déterminer T_e. Cette partie linéaire de la caractéristique est bornée inférieurement quand $V_S = V_f$: les électrons sont tous repoussés par la sonde à l'exception d'un flux d'électrons égal au flux incident d'ions.

Des caractéristiques linéaires sont obtenues jusqu'aux densités $n_o = 10^{12}$ at/cm^3 (figure 5). Le temps de thermalisation effectif est inférieur au temps moyen nécessaire à la collection d'un électron dans le plasma t_c. t_c est difficile à estimer.

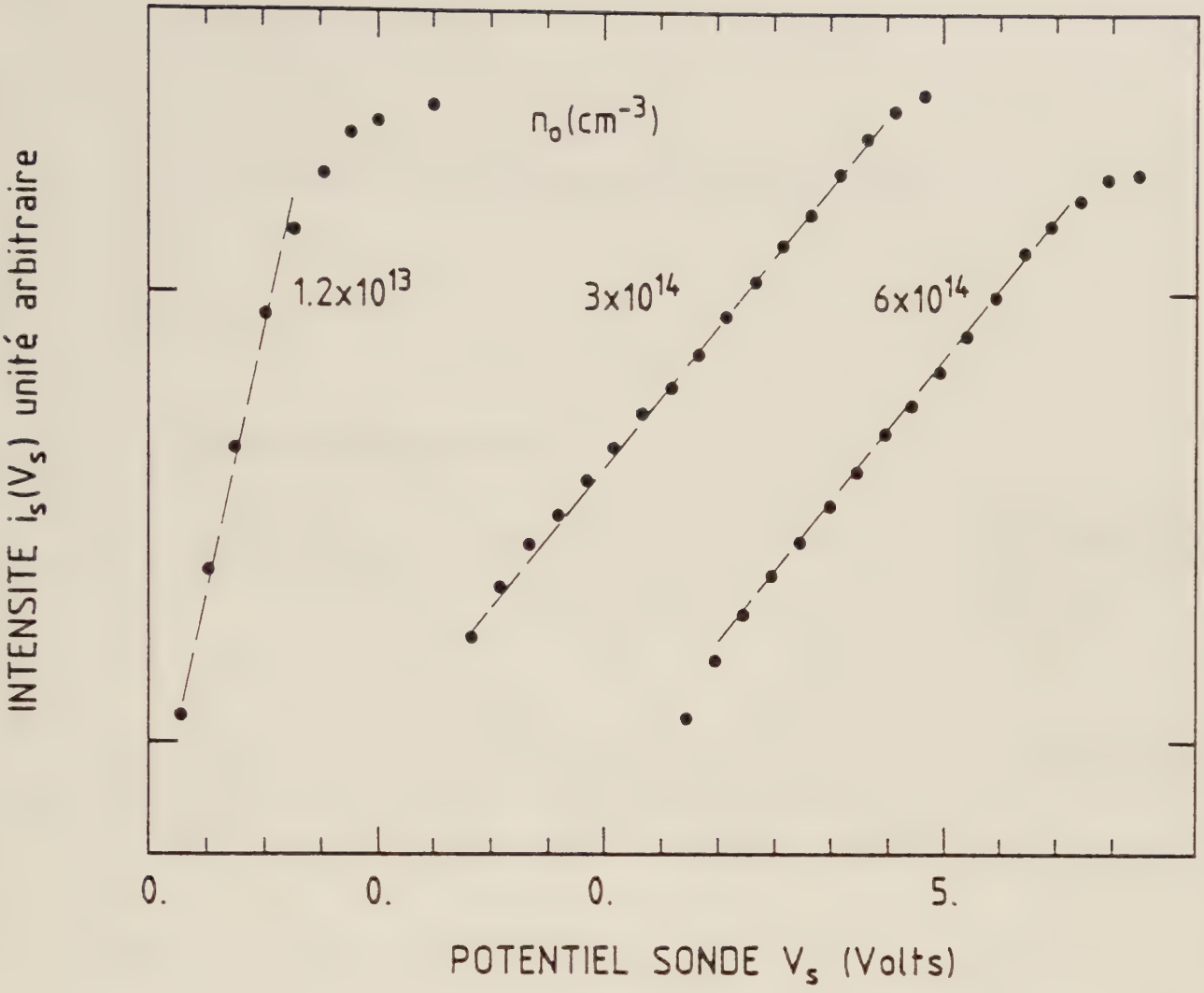


Figure 5 - Caractéristiques $i_S(V_S)$ de la sonde de Langmuir à différentes densités de vapeur et pour une intensité fixe du laser. La pente de la partie linéaire est voisine de $1/KT_e$.

Il est lié à la diffusion ambipolaire des électrons et des ions accélérés par la sonde ($V_S - V_P < 0$). Il est cependant plus court que le temps de diffusion des ions entre le bord du faisceau et la sonde, de l'ordre de 2×10^{-7} s. t_c est donc plus court que la durée de l'impulsion du laser et que certains temps caractéristiques d'interaction dans la vapeur. La température électronique T_e, déterminée par la technique de sonde, caractérise l'énergie cinétique initiale des électrons produits, ainsi que les premières interactions (temps d'interaction inférieurs à t_c) avec transfert d'énergie qu'ils subissent dans la vapeur.

IV - RESULTATS EXPERIMENTAUX ET INTERPRETATION

IV.A - Présentation générale

Les résultats sont tous obtenus dans les conditions d'excitation résonnante du doublet $3S_{1/2} - 3P_{1/2, 3/2}$.

Ont été mesurés :

- le nombre total des ions Na^+ et Na_2^+ que nous appelerons N_{ion} en fonction de la densité atomique n_o variant entre 10^{12} et 10^{16} at/cm^3 et de l'intensité lumineuse $\bar{I}$ variant entre 5×10^3 et 10^6 W/cm^2.
- le développement temporel de N_{ion} pour n_o et $\bar{I}$ fixés.
- l'énergie moyenne des électrons produits en fonction de n_o (10^{12} - 10^{15} at/cm^3) pour $\bar{I}$ fixée.

Il a été vérifié qu'aucun signal n'était observé en l'absence de vapeur, ce qui exclut la contribution de signaux parasites dus par exemple au dépôt de sodium sur les plaques collectrices. L'amplitude du signal à la résonance est d'au moins un ordre de grandeur supérieur à celle du signal non-résonnant.

Le nombre total N_{ion}, des ions collectés pendant une impulsion dans un volume $v_{eff} \sim 2{,}3 \times 10^{-3}$ cm^{-3} est porté sur un diagramme log-log :

- en fonction de n_o pour $\bar{I}$ fixée — figure 6
- en fonction de $\bar{I}$ pour n_o fixée — figure 7

La considération de quelques points relatifs à ces deux figures permet d'articuler la présentation des résultats. On remarque en effet que N_{ion} présente deux types distincts de dépendance en fonction de n_o dans les régions 10^{12} - 10^{13} at/cm^3 (région I) et 10^{13} - 10^{15} at/cm^3 (région II) :

1 - l'ionisation fractionnelle, inférieure à 10^{-3} dans la région I, croît très rapidement en fonction de n_o dans la région II, jusqu'à des valeurs voisines de 1.

2 - simultanément, la température électronique (figure 6.b) montre un brusque changement de comportement entre les régions I et II.

Plus généralement, les résultats obtenus se divisent naturellement entre deux zones de densité n_o distinctes :

- Région I $\quad 10^{12} \leq n_o \leq 10^{13}$ at/cm^3
- Région II $\quad 10^{13} \leq n_o \leq 10^{15}$ at/cm^3

Nous présentons donc séparément ces deux ensembles de résultats, correspondant à des régimes d'ionisation distincts. Nous n'interpréterons que les résultats à haute densité (région II) / 3 d /. Une interprétation possible des résultats relatifs à la région I a été donnée dans des publications récentes / 3 b, 3 c /. Elle doit être reprise après de nouveaux développements expérimentaux.

IV.B - Région des faibles densités $10^{12} \leq n_o \leq 10^{13}$ at/cm^3

IV.B.1 - Analyse des mesures du nombre total d'ions

Le nombre total d'ions ($Na^+ + Na_2^+$) créés dans le volume $V_{eff} = 2{,}3.10^{-3}$ cm^3 est mesuré :

- par mesure directe de charge à l'électromètre quand $n_o \geq 10^{13}$ at/cm^3.

- par mesure analogique de l'intensité maximale du courant d'ions quand $n_o > 10^{13}$ at/cm^3.

N_{ion} est ensuite estimé par normalisation (cf. III.C.2).

Les mesures de N_{ion} présentées en figure 6.a et figure 7 sont faites à la résonance $3S_{1/2} - 3P_{3/2}$. Elles sont comparables à celles faites à la résonance $3S_{1/2} - 3P_{1/2}$ du doublet. Le nombre des ions produits hors résonance n'est pas mesurable. Dans le Tableau 5, N_{ion} est reporté en fonction de n_o et $\bar{I}$.

TABLEAU 5

Mesures du nombre d'ions N_{ion} créés pendant une impulsion du laser en fonction de n_o et $\bar{I}$

$\bar{I}$ (W/cm^2)	2.5(5)	1.6(5)	1.1(5)	5.6(4)	2.5(4)	1. (4)	5.5(3)
n_o (cm^{-3})							
2.5(12)	3. (6)	2.2(6)	1.6(6)	9.4(5)	4.3(5)		
4.3(12)	9.4(6)	2.7(6)	5.5(6)	3.4(6)	1.8(6)	4.7(5)	7.8(4)
7.1(12)	2.8(7)	2.3(7)	1.9(7)	1.1(7)	5.1(6)	7.8(5)	1.2(5)
1.2(13)	7.5(7)	5.3(7)	4.7(7)	2.7(7)	1.1(7)	1.2(6)	3.9(5)
1.8(13)	2.2(8)	1.6(8)	1.3(8)	7.8(7)	3. (7)	4.1(6)	1.1(6)

Note : l'exposant de 10 est entre parenthèses.

1 - Variation de N_{ion} en fonction de n_o

Les mesures sont présentées en figure 6.a, pour $\bar{I} = 1{,}5 \times 10^5$ W/cm^2. Pour chaque intensité $\bar{I}$, la variation de N_{ion} avec n_o est approximativement quadratique. A partir du Tableau 1, on peut déterminer les pentes suivantes (moindres carrés) :

$\bar{I}$ (W/cm^2)	2.5(5)	1.6(5)	1.1(5)	5.6(4)	2.5(4)
pente	2.1	2.1	2.2	2.2	2.1

La dépendance quadratique caractérise très probablement un processus d'ionisation collisionnel, impliquant au moins 1 atome dans l'état excité 3p.

2 - Variation de N_{ion} en fonction de $\bar{I}$

La variation de N_{ion} avec $\bar{I}$, présentée en figure 7 a deux aspects :

- elle est approximativement quadratique sur l'intervalle $5 \times 10^3 - 5 \times 10^4$ W/cm^2.
- elle se sature au-delà de $\bar{I} = 5 \times 10^4$ W/cm^2. Cette intensité est 20 fois supérieure à l'intensité de saturation $I_S = 2 \times 10^3$ W/cm^2.

IV.B.2 - Estimation d'un taux "effectif" d'ionisation

Nous ne ferons aucune discussion critique détaillée des différents mécanismes qui interpréteraient nos résultats dans la région I.

Nous nous limiterons aux remarques suivantes :

- le mécanisme d'ionisation est un mécanisme collisionnel (ou avec étape intermédiaire collisionnelle) impliquant au moins un atome dans l'état excité (3p) (condition de résonance) ;
- le nombre des ions créés dépend de $\bar{I}$ au-delà de l'intensité de saturation de la transition 3s-3p.

Nous définirons un taux "effectif" d'ionisation associé à l'ensemble des mécanismes en jeu en écrivant le nombre total des ions collectés sous la forme :

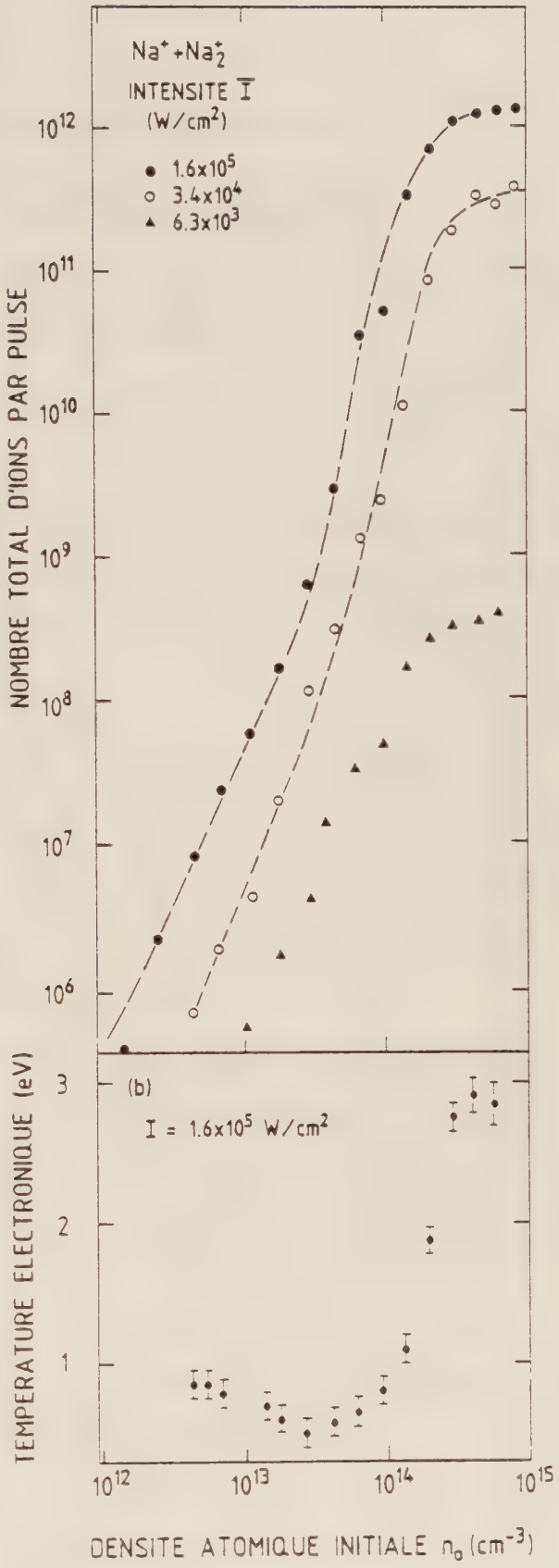


Figure 6.a - Mesures du nombre total d'ions N_{ion} créés pendant une impulsion du laser en fonction de la densité n_o, pour différentes intensités $\bar{I}$ du laser.

Figure 6.b - Mesure de la température électronique (eV) en fonction de la densité n_o pour une intensité fixe du laser $\bar{I} = 1{,}6 \times 10^5$ W/cm^2.

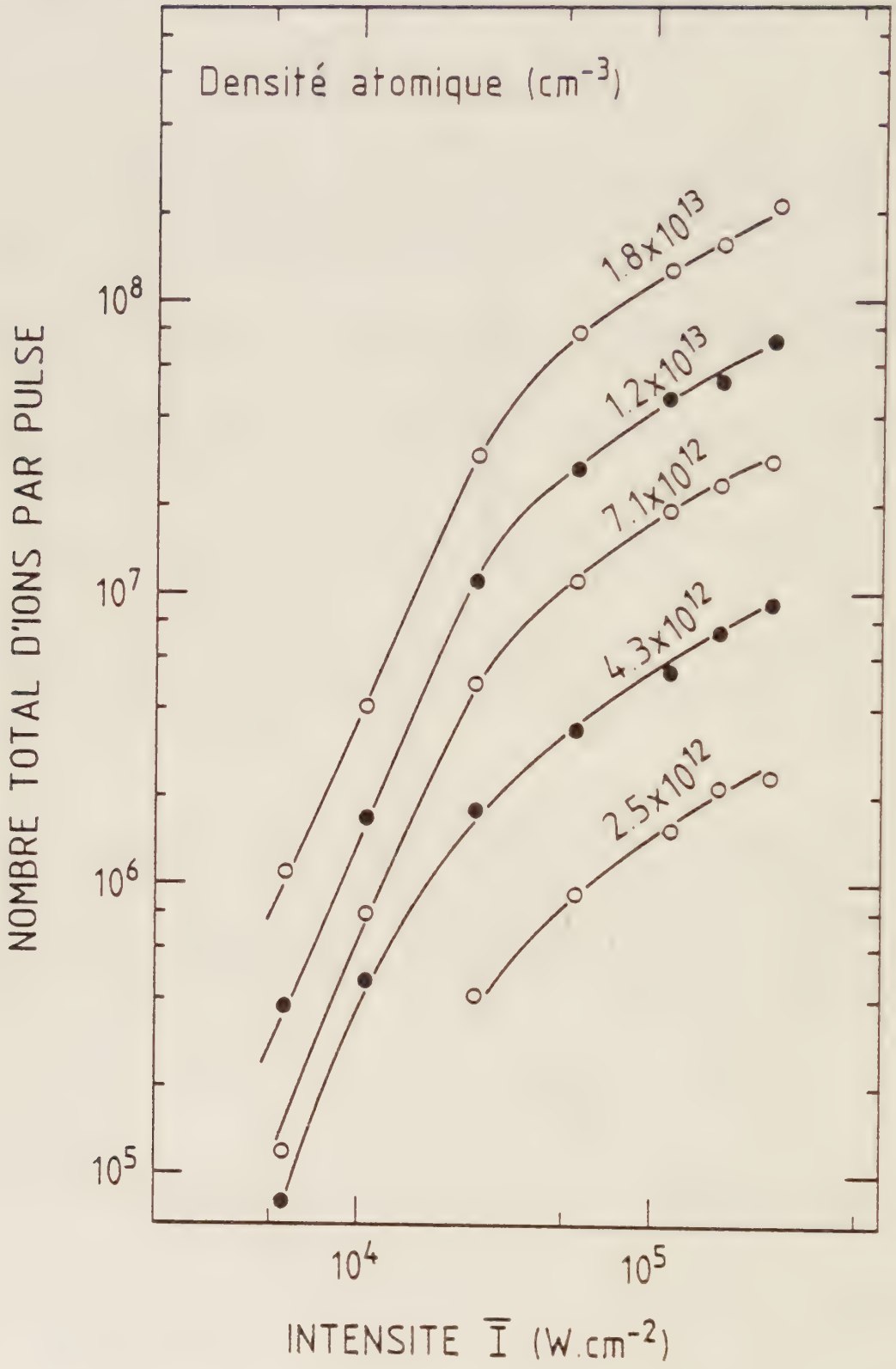


Figure - Mesures du nombre total d'ions N_{ion} en fonction de l'intensité du laser $\bar{I}$, pour différentes densités de vapeur (cm^{-3}).

$$N_{ion} = \xi\ (\bar{I})\ \ \frac{n_o^2}{4}\ \tau\ v_{eff} \quad ; \quad v_{eff} = \pi\ r_o^2 L$$

Dans la dépendance en $\bar{I}$ de $\xi\ (\bar{I})$ sont inclues :

- les variations avec $\bar{I}$ de la densité dans l'état excité (3p),
- la variation avec $\bar{I}$ du volume d'interaction,
- la variation avec $\bar{I}$ des sections efficaces et coefficients d'évolution inclus dans ξ.

Nous pouvons donner le Tableau 6 des valeurs de $\xi\ (\bar{I})$ ($cm^3.s^{-1}$). Nous ne chercherons pas à estimer l'incertitude importante sur $\xi\ (I)$, dont nous indiquons un ordre de grandeur.

TABLEAU 6

Taux effectif d'ionisation $\xi\ (\bar{I})$ en fonction de $\bar{I}$

$\bar{I}$ (W/cm^2)	2.5(5)	1.6(5)	1.1(5)	5.6(4)	2.5(4)	1. (4)	5.5(3)
n_o (cm^{-3})							
2.5(12)	8.3(-10)	6.1(-10)	4.3(-10)	2.6(-10)	1.2(-10)		
4.3(12)	8.8(-10)	7.2(-10)	5.1(-10)	3.2(-10)	1.7(-10)	4.4(-11)	7.3(-12)
7.1(12)	9.7(-10)	7.8(-10)	6.7(-10)	3.7(-10)	1.7(-10)	2.3(-10)	4. (-12)
1.2(13)	9. (-10)	6.4(-10)	5.7(-10)	3.3(-10)	1.3(-10)	2.1(-11)	4.7(-12)
1.8(13)	1.2(-9)	8.4(-10)	7.1(-10)	4.2(-10)	1.6(-10)	2.2(-11)	5.8(-12)
$\xi\ (\bar{I})$	9.6(-10)	7.2(-10)	5.8(-10)	3.4(-10)	1.5(-10)	2.7(-11)	5.4(-12)

La dernière ligne contient une valeur moyenne $\bar{\xi}$.

Les mécanismes collisionnels d'ionisation, pour lesquels on définit le taux effectif $\xi\ (I)$ entre 10^{12} et 10^{13} at/cm^3, contribuent toujours à l'ionisation au-delà de $n_o = 10^{13}$ at/cm^3. Nous verrons qu'ils ne sont pas dominants : pendant la durée de l'interaction (1 µs) ils "ensemencent" en électrons le milieu

atomique excité et initient un processus d'ionisation en chaîne, dans lequel les collisions électron-atome jouent un rôle déterminant. Nous reprendrons dans l'analyse des résultats relatifs aux hautes densités, les valeurs de ξ $(\bar{I})$ ci-dessus.

IV.B.3 - Développement expérimental

Des résultats semblables ont été obtenus par différentes équipes et plusieurs mécanismes d'ionisation ont été proposés :

- l'ionisation multiphotonique de Na (3p) :

$$Na\ (3p) + 2\ \hbar\omega \rightarrow Na^+ + e^- \qquad (1)$$

MEASURES et coll./ 2.b /, LUCATORTO et Mc ILRATH / 1.b /.

- l'ionisation associative de deux atomes dans l'état 3p, éventuellement assistée par le rayonnement (DE JONG et Van der VALK / 19 /, / 3.b /) :

$$Na\ (3p) + Na\ (3p) \xrightarrow{(\hbar\omega)} Na_2^+ + e^- \qquad (2)$$

- la photoionisation ou l'ionisation collisionnelle d'états hautement excités (nl), formés par collision inélastique de deux atomes dans l'état (3p) (/ 5 /, ALLEGRINI et coll. / 20 /, KOPYSTYNSKA et KOWALCZYK / 21 /) :

$$Na\ (3p) + Na(3p) \rightarrow Na(nl) + Na(3s) + \Delta E_c \qquad (3)$$

où nl = 3d, 4p, 5s, 4d, ...

$$Na\ (nl) + \hbar\omega \rightarrow Na^+ + e^- \qquad (4)$$

$$Na\ (nl) + Na(3p) \rightarrow Na^+ + Na(3s) + e^- \qquad (5)$$

- l'ionisation Penning assistée par le rayonnement de deux atomes dans l'état (3p) (GELTMAN / 14.b /, / 8 /) :

$$Na(3p) + Na(3p) + \hbar\omega \rightarrow Na^+ + Na(3s) + e^-$$

- l'ionisation associative assistée par le rayonnement / 7 /, / 8 /

$$Na(3p) + Na(3s) + \hbar\omega \rightarrow Na_2^+ + e^-$$

Les interprétations publiées jusqu'ici sont encore hypothétiques et relatives à un domaine de densité atomique et de puissance lumineuse particulier. Leur discussion critique requiert :

- l'analyse en masse des ions créés,
- l'estimation de la densité des deux types d'ions créés,
- l'analyse en énergie des électrons créés.

Cette étude sera développée à la suite des mesures reportées ici. Des données préliminaires ont fait l'objet de récentes publications / 3.c /.

IV.C - Brefs résultats de l'analyse en masse des ions

Nous rapportons dans ce chapitre les résultats préliminaires de l'analyse en masse des ions par une méthode de temps de vol. Le but de cette analyse est de déterminer quel type d'ion est formé préférentiellement dans les régions I et II.

IV.C.1 - Description de la méthode de temps de vol

Les ions formés dans le faisceau focalisé sous un diamètre de 0,2 mm sont accélérés entre deux électrodes planes, parallèles au faisceau, distantes de 3,4 mm, et extraits par un trou de 0,5 mm de diamètre percé dans l'électrode reliée à la

masse. La tension accélératrice V_o varie de 50 à 200 eV et suffit à saturer le courant des ions extraits. En étudiant la saturation du courant d'ions avec V_o, on estime que la formation d'ions secondaires par collisions neutre-particule accélérée est négligeable, quand $n_o < 10^{14}$ cm^{-3}. La distance de vol des ions est 34,6 cm. Ils sont détectés par un multiplicateur de particules Johnston MM1 travaillant en mode analogique. Deux pics sont distinctement observés dans le temps, qui correspondent à des ions de masse 23 et 46, démontrant que Na^+ et Na_2^+ sont simultanément collectés. L'amplitude de ces pics est maximale quand le faisceau est à la hauteur du trou d'extraction et décroît très rapidement quand il s'écarte de cette position. On vérifie ainsi que seuls les ions créés dans le volume v_{eff} contribuent au signal, que les atomes Na déposés sur les électrodes contribuent de façon négligeable. Le rapport des gains du M.P., $G_{Na^+}/G_{Na_2^+}$, pour les deux types d'ions est supposé égal à 1.

IV.C.2 - Résultats

1 - Région I

i) Dans la région I, $10^{12} \leq n_o \leq 10^{13}$ cm^{-3}, la figure 8 présente la variation relative des intensités des courants i_{Na^+} et $i_{Na_2^+}$ en fonction de $\bar{I}$. On notera que le rapport $i_{Na^+} / i_{Na_2^+}$ varie lentement avec $\bar{I}$ de 0,4 ($\bar{I} = 5 \times 10^3$ W/cm^2) jusqu'à la valeur asymptotiquement constante de 3 ($\bar{I} \geq 10^6$/cm^2). Il passe par la valeur 1 quand $\bar{I} \simeq 10^5$ W/cm^2.

ii) Sur la figure 9 sont comparées les intensités des courants $i^+(1/2)$, $i^+(3/2)$ et $i_2^+(1/2)$, $i_2^+(3/2)$, enregistrés aux résonances 1/2 et 3/2 du doublet. On constate une nette dissymétrie entre les deux résonances, des signaux d'ions Na_2^+ alors que les signaux d'ions Na^+ ont des intensités comparables.

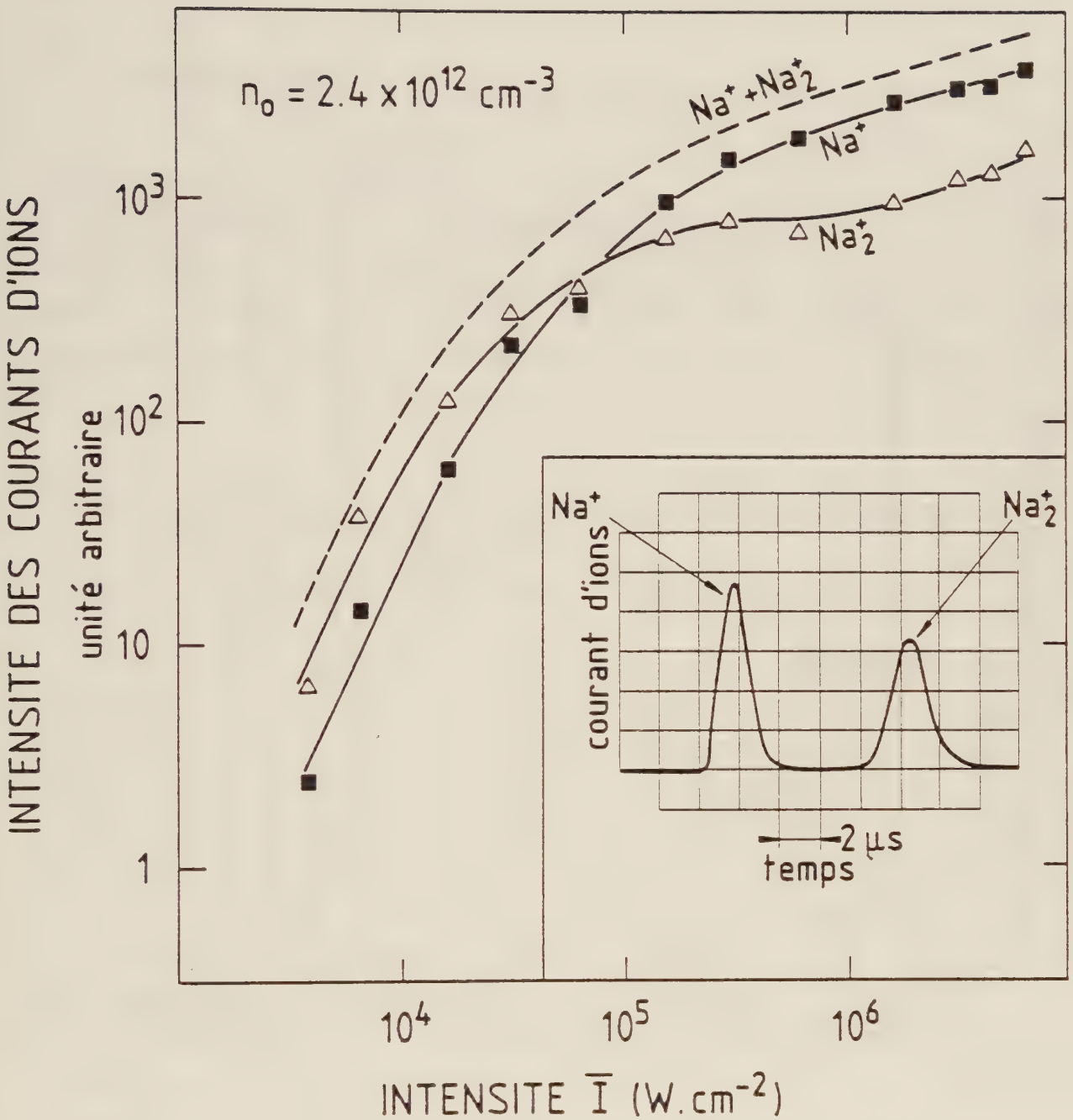


Figure 8 - Mesure analogique de l'intensité relative des courants d'ions $i(Na^+)$ et $i(Na_2^+)$ par la méthode de temps de vol. Le signal total $Na^+ + Na_2^+$ peut être comparé à celui présenté en figure 7, pour $n_o = 2{,}5 \times 10^{12}$ at/cm^3.

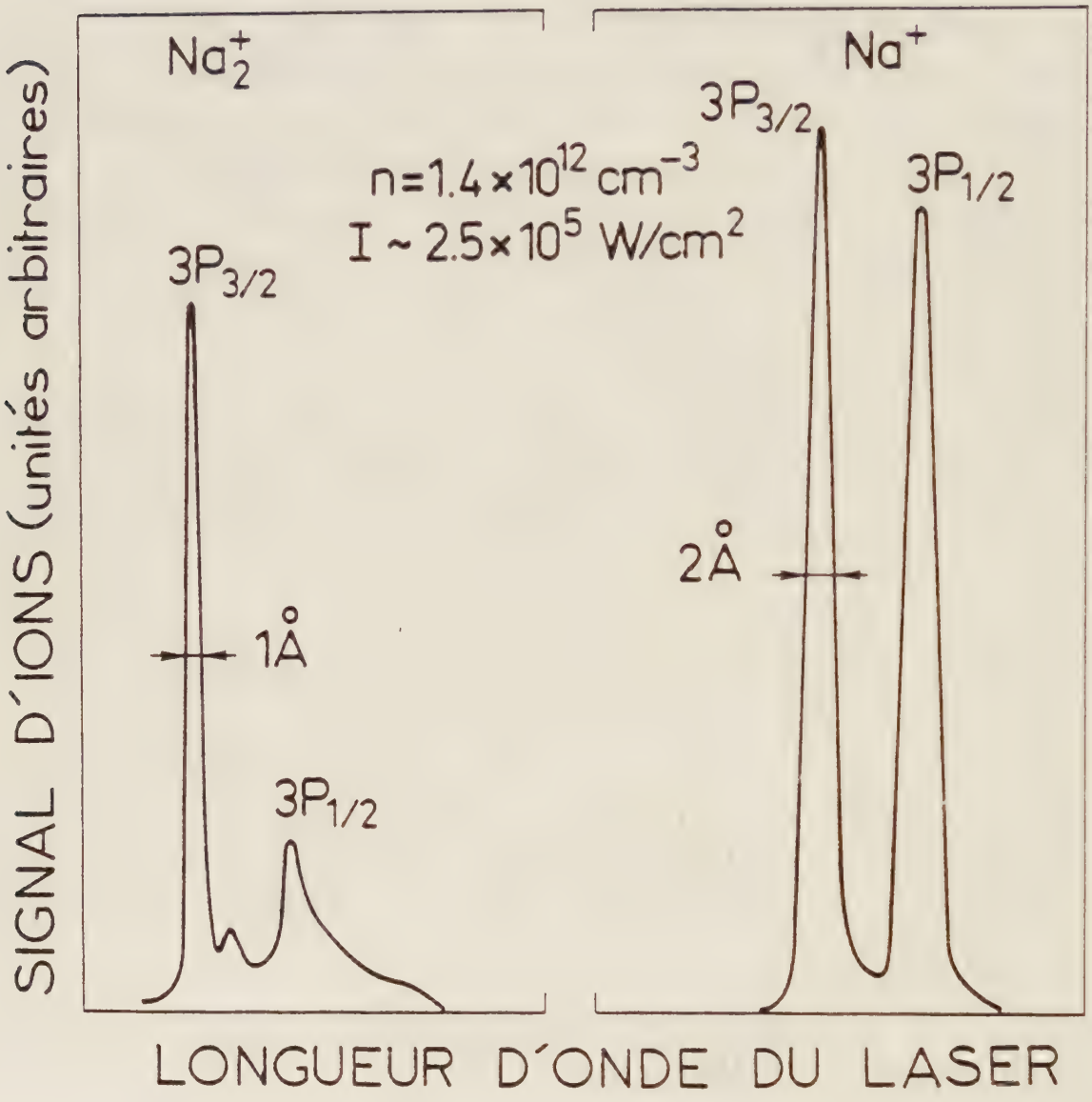


Figure 9 - Mesure analogique de l'intensité des courants d'ions $i(Na_2^+)$ et $i(Na^+)$ mesurés aux deux résonances $P_{1/2}$ et $P_{3/2}$ du doublet. On notera la forte asymétrie des signaux $i(Na_2^+)$ entre les deux résonances.

Ces résultats sont en accord avec les observations de WEINER et POLAK-DINGELS / 8 / faites dans une expérience de jets croisés.

2 - Région II

Dans la région II, $n_o \geq 10^{13}$ at/cm^3 le pic d'ions Na^+ domine largement le pic Na_2^+ à toutes les intensités T. La résolution de la méthode de temps de vol ne permet plus de mesurer correctement le rapport i^+/i_2^+, le pic Na^+ recouvrant partiellement le second. On retiendra cependant que les ions créés dans la vapeur sont essentiellement des ions atomiques au-delà de $n_o = 3 \times 10^{13}$ at/cm^3, aux intensités $\bar{I}$ (5×10^3 - 5×10^5 W/cm^2).

IV.D - Région des fortes densités $10^{13} \leq n_o \leq 10^{15}$ at/cm^3

IV.D.1 - Analyse des mesures du nombre total d'ions

A haute densité, l'ionisation fractionnelle devient supérieure à 10^{-3}. Les résultats de l'analyse en masse montrent que ce sont des ions Na^+ qui sont créés principalement dans la vapeur, à toutes les intensités $\bar{I}$ (5×10^3 - 5×10^5 W/cm^2).
Il est alors possible de mesurer le nombre des ions Na^+ créés pendant l'impulsion par mesure directe de charge à l'électromètre.
Le volume effectif d'interaction est $v_{eff} = 5 \times 10^{-3}$ cm^3.
Ce système de collection des ions a été présenté en III.C.1. Le champ collecteur perturbe peu l'interaction : le potentiel du plasma créé s'oppose à la pénétration du champ collecteur et confine les particules chargées pendant la durée de l'impulsion du laser. Les collisions avec des particules accélérées par le champ extracteur sont encore négligeables à ces densités. La collection des ions se fait progressivement sur une échelle de temps plus longue que la durée de l'impulsion. Le nombre des ions pro-

duits hors résonance n'est pas mesurable. Le Tableau 7 contient les valeurs de N_{ion}, nombre d'ions par impulsion du laser, en fonction de n_o et de $\bar{I}$.

TABLEAU 7

Variations de N_{ion} avec n_o et $\bar{I}$
Ces valeurs sont reportées en figure 6.a

$\bar{I}$(W/cm^2)	1.6(5)	1.0(5)	6.9(4)	3.4(4)	1.5(4)	6.3(3)
n_o(cm^{-3})						
2.9(13)	6.3(8)	5.2(8)	4.3(8)	1.8(8)	2.5(7)	2.2(6)
4.4(13)	2.8(9)	2.3(9)	1.8(9)	5.8(8)	8.8(7)	1.6(7)
6.8(13)	3.3(10)	1.8(10)	1.2(10)	1.8(9)	2.4(8)	3.4(7)
1.0(14)	4.8(10)	2.6(10)	1.7(10)	2.3(9)	3.4(8)	4.5(7)
1.5(14)	3.1(11)	2.1(11)	1.3(11)	1.1(10)	7.5(8)	1.6(8)
2.2(14)	6.3(11)	5.1(11)	3.3(11)	8.1(10)	2.7(9)	2.6(8)
3.1(14)	9.9(11)	8.0(11)	5.5(11)	1.8(11)	5.6(9)	3.1(8)
4.4(14)	1.1(12)	9.4(11)	7.5(11)	3.1(11)	6.3(9)	3.0(8)
6.1(14)	1.2(12)	1.1(12)	8.8(11)	3.3(11)	4.9(9)	
8.5(14)	1.2(12)	9.9(11)	8.1(11)	3.7(11)		
1.2(15)	6.4(11)	8.7(11)	7.8(11)	1.9(11)		

- Variation de N_{ion} avec n_o pour $\bar{I}$ fixée

Aux intensités $\bar{I} \simeq 10^5$ W/cm^2 (cf. figure 6.a), la variation de N_{ion} avec n_o, quadratique jusqu'à 10^{13} at/cm^3 devient nettement plus rapide. Une dépendance quartique est compatible avec les résultats entre 2×10^{13} et 10^{14} at/cm^3. L'ionisation fractionnelle est maximale et proche de 1 quand $n_o = 2 \times 10^{14}$ at/cm^3 et décroît à plus haute densité. Cette décroissance est

attribuée à l'absorption du faisceau dans la vapeur dense et à la réduction du volume d'interaction qui en résulte. Ce phénomène d'absorption et par suite de diminution du signal d'ions est nettement visible aux intensités plus faibles ($\bar{I} \simeq 10^4$ W/cm^2) sur la figure 6.a.

Des observations semblables d'une variation très rapide de N_{ion} avec n_o, au-delà de la dépendance quadratique, entre 5×10^{13} et 10^{15} at/cm^3, ont été faites par STACEWICZ / 4 /, qui utilise une impulsion d'excitation très courte (10 ns).

IV.D.2 - Energie moyenne des électrons

Nous avons décrit en III.D la méthode de mesure de l'énergie moyenne des électrons au moyen d'une sonde de Langmuir. Quand $n_o > 10^{13}$ at/cm^3, le temps de thermalisation des électrons t_{th} est inférieur à 1 µs. Nous avons indiqué en III.D que la valeur moyenne mesurée caractérise l'évolution de la distribution d'énergie initiale pendant un temps t_c de collection des électrons. Le temps t_c est plus court que la durée de l'impulsion du laser et peut être plus court que certains temps caractéristiques d'interaction dans la vapeur. L'énergie moyenne mesurée est portée en figure 6.b en fonction de n_o pour $\bar{I} = 1{,}6 \times 10^5$ W/cm^2.

L'énergie ε_e (eV) des électrons produits quand $n_o \simeq 10^{13}$ at/cm^3 est 0,8 eV. Elle est caractéristique des ions créés par les mécanismes d'ensemencement. Une légère décroissance de ε_e est observée entre 10^{13} et 3×10^{13} at/cm^3. Quand $n_o > 3 \times 10^{13}$ at/cm^3, ε_e croît très rapidement jusqu'à la valeur 2,9 eV quand $n_o = 10^{15}$ at/cm^3, où elle présente un palier. Cette variation très rapide correspond à celle de N_{ion} entre 3×10^{13} et 10^{14} at/cm^3.

Les résultats ci-dessus corroborent les observations de STACEWICZ / 4 / : par une méthode de double sonde, STACEWICZ

a mis en évidence la présence d'électrons "chauds" ($\varepsilon_e \geq 2$ eV) dans la vapeur quand $n_o = 10^{15}$ at/cm^3, jusqu'à des temps de 1 µs après le tir du laser.

IV.D.3 - Evolution temporelle du signal d'ions

L'utilisation d'une cellule de Pockels qui tronque l'impulsion du laser après un temps t variable, permet de suivre l'évolution en temps du nombre total d'ions, cf. II.B.4. N_{ion} est porté en fonction de la durée t de l'impulsion en figure 10 pour deux densités distinctes : $n_o = 6 \times 10^{14}$ at/cm^3, $n_o = 7{,}1 \times 10^{12}$ at/cm^3. On voit que le développement du nombre d'ions à haute densité n'est plus linéaire avec le temps comme il l'est à faible densité (pente 1,3). Sa variation est plus rapide qu'une variation cubique (pente 3,5) entre 120 ns et 0,5 µs (au maximum d'intensité de l'impulsion). Il a été vérifié que le signal d'ions ne varie plus après la fin de l'impulsion du laser. Le nombre des ions produits durant la phase d'entretien de la population de l'état excité par le piégeage de radiation, est donc négligeable dans notre expérience.

IV.E - Essai d'interprétation des résultats

IV.E.1 - Mécanismes collisionnels en chaîne

Quand $n_o < 10^{13}$ at/cm^3, la variation quadratique de N_{ion} avec n_o indique que le processus d'ionisation inclut une et une seule étape collisionnelle. La variation très rapide de N_{ion} avec n_o, $10^{13} \leq n_o \leq 10^{14}$ at/cm^3, montre l'existence de plusieurs étapes collisionnelles successives dans le processus d'ionisation, ou d'un phénomène d'ionisation en chaîne qui conduit à une variation exponentielle de N_{ion} avec n_o.

Dans notre interprétation, nous faisons l'hypothèse d'un rôle prépondérant des collisions électron-atome des trois types suivants :

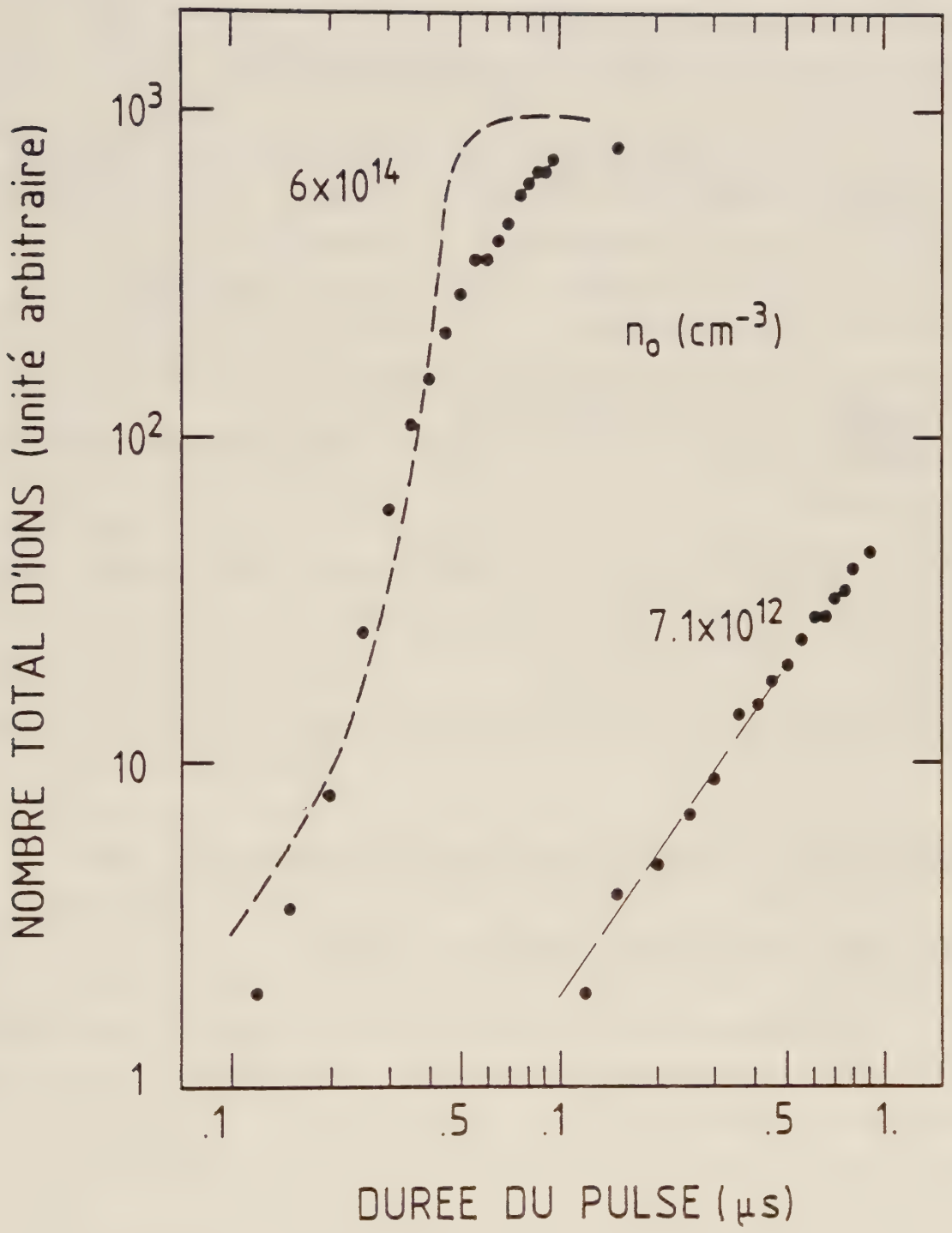


Figure 10 - Mesure relative du nombre total d'ions en fonction de la durée de l'impulsion du laser.

- collision super-élastique "chauffant" les électrons,
- excitation des transitions 3s-nl et 3p-nl par impact électronique ; nl = 3p, 4s, 3d, 4p, 5s, etc...
- ionisation des états nl par impact électronique.

Ce modèle a été proposé par MEASURES / 2.a / et développé quantitativement sous le nom de "LIBORS" ("Laser ionisation based on resonance saturation"), MEASURES et coll. / 2.b,c,d /. Plusieurs auteurs l'ont invoqué (LUCATORTO et Mc ILRATH / 1.a,b /, SKINNER / 22 /) mais les confirmations expérimentales directes (mise en évidence d'électrons chauds dans la vapeur) sont peu nombreuses / 3.a,b,d /, / 4 /. Des observations récentes / 5 / de la distribution d'énergie des électrons créés dans un jet effusif d'atomes de sodium (n_o = 10^{13} cm^{-3}) excité par un laser résonnant continu (3 W/cm^2) ont démontré l'existence dans le jet d'électrons très chauds ($\varepsilon_e \simeq$ 4-5 eV), prévue par le modèle LIBORS.

IV.E.2 - Principales étapes du processus d'ionisation

Nous détaillons les étapes successives du processus d'ionisation qui se développe pendant l'impulsion du laser.

1 - Saturation de la transition 3s-3p

La saturation de la transition 3s-3p pour l'intensité $\bar{I} = 10^5$ W/cm^2 singifie que les densités de population n_{3p} et n_{3s} sont maintenues dans un rapport constant égal à 1 (polarisation linéaire) par le laser pendant la durée de l'interaction. Le temps de pompage multimode est de 10^{-11} s pour $\bar{I} = 10^5$ W/cm^2, il est donc inférieur aux autres temps caractéristiques de peuplement/dépeuplement de l'état 3p.

2 - Etape d'ensemencement

Les mécanismes "d'ensemencement" qui sont observables seuls à faible densité, pendant l'impulsion du laser (région I), libèrent les premiers électrons dans le milieu. On a associé à ces mécanismes (collisionnels) un taux effectif ξ ($\bar{I}$), estimé dans le Tableau 3. L'énergie cinétique moyenne des premiers électrons est 0,8 eV.

3 - Etape intermédiaire

i) Les électrons d'ensemencement (ε_e = 0,8 eV) sont "chauffés" par collisions super-élastiques avec les atomes dans l'état (3p) :

$$(1)_{S.E.} \quad Na(3p) + e\ (\varepsilon_e) \rightarrow Na(3s) + e^-\ (\varepsilon_e + 2.1\ eV)$$

Le gain d'énergie dans une collision, E_{3p} = 2.1 eV, s'ajoute à l'énergie initiale 0,8 eV, pour donner une énergie moyenne de 2,9 eV proche de la valeur mesurée expérimentalement quand $n_o = 10^{15}$ at/cm^3.

ii) Après une collision, les électrons peuvent exciter les transitions 3p-4s (1,09 eV) ; 3p-3d (1,52 eV) ; 3p-4p (1,65 eV), etc... STACEWICZ et KRASINSKY / 23 / ont démontré que l'impact électronique est la voie principale de formation des états excités (nl) (nl = 4s, 3d, 4p, 5s, ...) dans la vapeur à haute densité $n_o \simeq 10^{15}$ at/cm^3.

$$(2) \quad Na(3p) + e^-(\varepsilon_e) \rightarrow Na(nl) + e^-\ (lent)$$

iii) Les états excités nl ainsi formés tels que : $(E_{nl} + \hbar\omega) \geq 5,15$ eV, seuil d'ionisation de l'atome, peuvent être ensuite photoionisés par le rayonnement :

$$(3) \quad Na(nl) + \hbar\omega \rightarrow Na^+ + e^-\ (lent)$$

iv) Les états (nl) peuvent être également ionisés par collision avec des états (3p). Les sections efficaces d'ionisation Penning des systèmes collisionnels (état excité - état résonnant) mesurées par CHERET et coll. / 24.a,b / dans le cas du rubidium, sont de l'ordre de quelques 10^{-15} cm^2. J.L. LE GOUËT et coll. / 5 /, dont les résultats seront commentés dans un prochain paragraphe, proposent l'existence d'un mécanisme du type (4) ci-dessous dans le cas du sodium :

(4) $Na(nl) + Na(3p) \rightarrow Na^+ + Na(3s) + e^-$

nl = 3d, 5s, 4d.

4 - Etape finale

A la fin de l'impulsion du laser, la densité d'électrons devient assez importante pour que les mécanismes d'ionisation impliquant trois collisions e^--atome commencent à jouer un rôle prépondérant. Les électrons confinés dans le plasma cylindrique par interaction électrostatique avec les ions peuvent subir plusieurs collisions (dont les temps caractéristiques sont inférieurs à 1 µs), même si le libre parcours moyen est supérieur au diamètre du faisceau.

i) Les électrons ayant subi deux collisions superélastiques (d'énergie initiale 0.8 eV) peuvent ioniser les états (3p).

(5) $Na(3p) + e^- (\varepsilon_e + 4{,}2\ eV) \rightarrow Na^+ + 2\ e^-$ (lent)

ii) Une troisième collision e^--atome peut également ioniser un état (nl)

(6) $Na(nl) + e^- (\varepsilon_e) \rightarrow Na^+ + e^-$ (lent)

iii) Tous les électrons secondaires ainsi créés aux étapes successives, sont à leur tout chauffés dans les collisions superélastiques (1), etc... Ils créent une avalanche caractérisée par la dépendance exponentielle du nombre des ions en fonction du temps, et de n_o, observée expérimentalement.

La condition de saturation de la transition 3s-3p fournit un réservoir d'atomes excités qui, d'une part, transfère de l'énergie aux électrons par (1), d'autre part, abaisse le potentiel d'ionisation dans (5) et (6).

IV.E.3 - Sections efficaces - Analyse quantitative

1 - Collisions superélastiques

La section efficace à énergie d'impact ε_e de collision superélastique est reliée à la section efficace d'excitation de la transition 1 - 2 (par exemple 3s-3p) par le principe de microréversibilité

$$\sigma_{21}(\varepsilon_e) = \frac{g_1}{g_2} \frac{\varepsilon_e + E_{21}}{\varepsilon_e} \sigma_{12}(\varepsilon_e + E_{21})$$

De la détermination expérimentale de σ_{3s-3p} par ENNERMARK et GALLAGHER / 25 / on peut estimer une section efficace σ_{3p-3s} de $3,5 \times 10^{-15}$ cm^{-2} quand $\varepsilon_e = 0,8$ eV ($v_e = 8,5 \times 10^7$ cm s^{-1}).

Les résultats de ENNEMARK et GALLAGHER sont reproduits en figure 11 ainsi que $\sigma_{3p-3s}(\varepsilon_e)$. Cette dernière section se compare bien à la section calculée par MOORES et coll. / 26 /. Le temps caractéristique d'interaction dans (1) est alors de 2×10^{-7} s quand $n_o = 3 \times 10^{13}$ cm^{-3}. Les sections efficaces d'excitation directe dans (2) n'ont pas été mesurées expérimentalement. On pourra les estimer grossièrement en utilisant l'approximation de Born, c'est-à-dire par une forme proportionnelle à

$$\frac{1}{\varepsilon_e} \text{ Log } \frac{\varepsilon_e}{E_{n1-3p}}$$

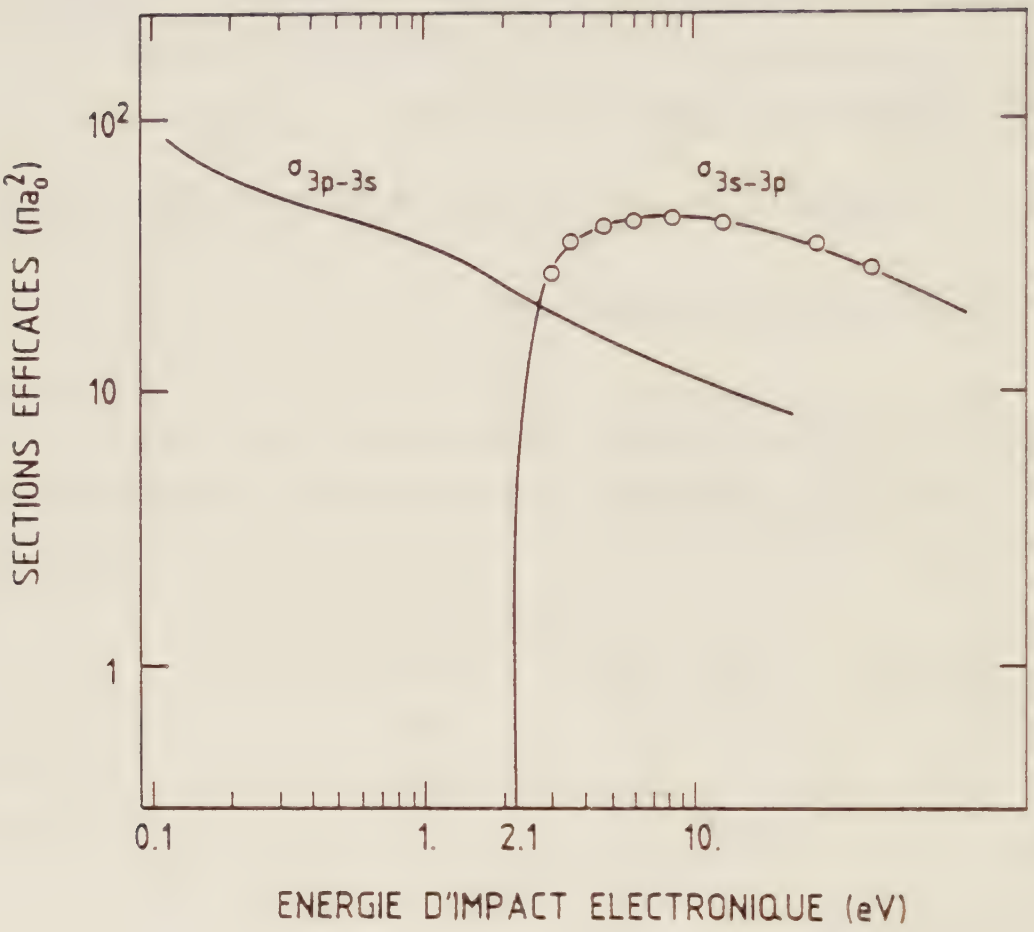


Figure 11 - Section efficace d'excitation de la transition 3s-3p par impact électronique d'après ENNEMARK et GALLAGHER / 25 /. On a également représenté la section efficace de collision superélastique σ_{3p-3s} qui s'en déduit par le principe de micro-réversibilité.

Dans le cas des transitions optiquement permises : 3p-ns,nd, la normalisation de ces expressions relativement au cas expérimental 3s-3p, s'effectue selon le rapport :

$$\frac{f_{3p\text{-}nl}}{E_{nl\text{-}3p}} \cdot \frac{E_{3p\text{-}3s}}{f_{3p\text{-}3s}}$$

f_{ij} étant la force d'oscillateur de la transition i-j (GELTMAN / 14.c /. On évalue ainsi des sections efficaces maximales : $\sigma_{3p\text{-}3d} \simeq 10^{-14}$ cm^2 ; $\sigma_{3p\text{-}3s} \simeq 2 \times 10^{-16}$ cm^2 ; $\sigma_{3p\text{-}3d} \simeq 10^{-15}$ cm^2. Ces valeurs seront reprises dans l'analyse quantitative présentée en Appendice 3.

2 - Ionisation par impact électronique

La forme semi-empirique que donne DRAWIN / 27 / de la section efficace des mécanismes (5) et (6), s'écrit :

$$\sigma_{ic}(\varepsilon_e) = 2.66\ \pi\ a_o^2 \left(\frac{E_H}{E_{ic}}\right)^2 \frac{y - 1}{y^2} \text{Log}\ (1.25\ y)$$

- E_{ic} potentiel d'ionisation de l'état i : $E_{ic} = E^+ - E(i)$
- E_H potentiel d'ionisation de l'hydrogène (= 13.6 eV)
- $y = \varepsilon_e / E_{ic}$.

Cette forme simple néglige les phénomènes de résonance éventuels. On déterminer ainsi un ordre de grandeur de 10^{-15} cm^2 ($\varepsilon_e \simeq$ 2-3 eV) pour σ_{ic}. Le temps caractéristique dans (5) est de 10^{-6} s quand $n_o \simeq 3 \times 10^{13}$ cm^{-3}. Les temps caractéristiques associés aux mécanismes de collision superélastiques, d'excitation et d'ionisation des atomes par impact électronique sont donc en général de l'ordre de ou inférieurs à 1 µs quand $n_o \simeq 3 \times 10^{13}$ cm^{-3} ; ce qui montre que ces mécanismes peuvent commencer à jouer un rôle pendant la durée de l'impulsion du laser à ces densités de vapeur.

3 - Modèle quantitatif

3.1 - Rappels sur le modèle LIBORS

MEASURES / 2.a / a le premier développé l'analyse quantitative des mécanismes de chauffage des électrons et d'ionisation de la vapeur par impact électronique. Le modèle "LIBORS" / 2.b,c,d / calcule l'évolution temporelle des différents paramètres du plasma pour une intensité fixée ($10^5 \leq \bar{I} \leq 10^8$ W/cm^2), et une densité atomique fixée ($10^{15} \leq n_o \leq 10^{17}$ cm^{-3}). Dans le cas du sodium, ce modèle inclut 20 états couplés par les principaux mécanismes d'excitation/désexcitation, d'ionisation et de recombinaison. Ces mécanismes sont :

- la saturation résonnante de la transition 3s-3p ;
- l'ionisation "d'ensemencement" de la vapeur que nous détaillerons plus loin et dont le taux peut dépendre de l'intensité $\bar{I}$;
- l'excitation directe par impact électronique de la transition nl-n'l' (nl = 3s, 3p, 4s, 3d, ... ; n'l' = 3p, 4s, 3d, 4p, ...) et la désexcitation correspondante n'l'-nl par collision superélastique ;
- l'ionisation par impact électronique des états (nl) = 3s, 3p, 4s, 3d, ...
- la photoionisation des états nl = 4s, 3d, ...
- les recombinaisons à 3 corps ($Na + Na^+ + e^-$) et radiatives ($Na^+ + e \rightarrow Na + h\nu$).

Les mécanismes d'ensemencement inclus dans le modèle sont :

i) L'ionisation à 2 photons de l'état (3p)

$$Na(3p) + 2\,\hbar\omega \rightarrow Na^+ + e\ (1,2\ eV)$$

Les calculs de la section efficace $\sigma^{(2)}$ donnent :

$\sigma^{(2)} = 3,6 \times 10^{-12}$ $cm^4.W^{-2}.s^{-1}$ GELTMAN / 14.b /

$\sigma^{(2)} = 7 \times 10^{-12}$ $cm^4.W^{-2}.s^{-1}$ LAUGHLIN / 28 /.

Nous pouvons comparer le nombre des ions produits par ce mécanisme à la valeur expérimentale mesurée dans les conditions où l'ensemencement est observable seul (région I) : ($n_o = 4,3 \times 10^{12}$ at/cm^3 , $\bar{I} \times 2,5 \times 10^5$ W/cm^2), le nombre des ions produits dans le volume $v_{eff} = 2,3 \times 10^{-3}$ cm^3 au bout de 1 µs est $2,2 \times 10^3$ (GELTMAN) ou $4,3 \times 10^{13}$ (LAUGHLIN), plus faibles de trois ordres de grandeur que N_{ion} expérimental : $N_{ion} = 9,4 \times 10^6$ ions.

ii) L'ionisation Penning assistée par le rayonnement de deux atomes dans l'état (3p).

$$Na(3p) + Na(3p) + \hbar\omega \rightarrow Na^+ + Na(3s) + e\ (1,2\ eV)$$

Ce mécanisme a été proposé par GELTMAN / 14 b / qui donne une section efficace de 10^{-19} cm^2 quand $\bar{I} \simeq 2,5 \times 10^5$ W/cm^2. Le nombre des ions produits par ce mécanisme d'ensemencement dans les conditions ci-dessus est de l'ordre de 100, très inférieur à la valeur expérimentale.

iii) L'ionisation associative de deux atomes dans l'état (3p).

La possibilité de l'ionisation associative à énergie thermique de deux atomes dans l'état (3p) a été démontré expérimentalement par DE JONG et Van der VALK / 19 / qui ont mesuré une section efficace $\sigma \simeq 5 \times 10^{-18}$ cm^2. Une valeur comparable ($\sigma = 2 \times 10^{-18}$ cm^2) a été mesurée par KUSHAWAHA et LEVENTHAL / 29 /. Ces deux expériences ont en commun d'utiliser de faibles intensités de pompe ($\bar{I} < 10$ W/cm^2) ce qui exclut la possibilité d'assistance par le rayonnement.

Dans les conditions expérimentales définies ci-dessus, ces sections efficaces conduisent à un nombre N_{ion} égal à 5×10^3 ou à 2×10^3, soit de trois ordres de grandeur inférieurs à la valeur expérimentale.

Nous noterons donc que les mécanismes "d'ensemencement" inclus dans ce modèle ne peuvent être extrapolés à notre cas expérimental ($n_o \simeq 10^{13}$ cm^{-3} , $\bar{I} \simeq 10^5$ W/cm^2). Le taux "effectif" ξ ($\bar{I}$) estimé précédemment recouvre d'autres mécanismes d'ionisation "d'ensemencement" plus efficaces dans les conditions de l'expérience.

Dans le modèle LIBORS, les sections efficaces de collisions inélastiques e^--atomes dépendent de l'énergie moyenne des électrons ε_e. L'évolution de ε_e est gouvernée par une équation de bilan dans laquelle, outre les termes correspondant aux mécanismes ci-dessus, figurent les termes de transfert élastique entre électrons et ions (interaction Coulombienne), entre électrons et neutres.

- Résultats du modèle LIBORS

a) Ce modèle calcule le développement temporel de l'ionisation. Il prédit la croissance très rapide de la densité d'ions n_{ion} avec le temps t, et la croissance simultanée de la température électronique. Le temps d'ionisation au bout duquel 75 % des neutres sont ionisés est de 1 µs quand $n_o = 10^{15}$ at/cm^3, $\bar{I} = 10^5$ W/cm^2, en bon accord avec nos résultats.

b) La température électronique est 1 eV après 1 µs. Elle résulte d'un équilibre entre chauffage inélastique d'une part, refroidissement inélastique et transfert d'énergie aux ions par interaction Coulombienne d'autre part (l'énergie cinétique des ions est égale à l'énergie électronique après 1 µs). Dans notre expérience, l'échelle de temps de collection des électrons est inférieure à 1 µs et l'équilibre ci-dessus n'est pas atteint.

3.2 - Analyse quantitative simplifiée

i) Nous avons repris l'analyse quantitative de l'ionisation, sous une forme simplifiée du modèle LIBORS, qui inclut les états 3s, 3p, 3d, 4p, 5s, 4d. Le but de cette analyse est de mettre en évidence à haute densité (10^{13} - 10^{15} at/cm^3) le rôle important du terme d'ensemencement ξ (I) mesuré à faible densité. Ce domaine de densité (10^{13} - 10^{15} at/cm^3) est distinct de celui étudié par MEASURES et coll.. Le terme d'ensemencement ξ (I) est de deux ordres de grandeur supérieur aux taux d'ionisation considérés par MEASURES et coll. pour $\bar{I} < 10^5$ W/cm^2. Les détails de l'analyse sont donnés dans l'Appendice 3.

ii) Comparaison avec les résultats expérimentaux.
La comparaison entre N_{ion} calculé et résultats expérimentaux est faite dans le Tableau 8 ci-après et sur la figure 12.

Sont reportés successivement dans ce tableau pour l'intensité $\bar{I} = 6 \times 10^5$ W/cm^2 :

1) N_{ion} expérimental en fonction de n_o ;

2) N_{ion} calculé en présence de mécanismes "d'ensemencement" de taux effectif ξ ($\bar{I}$) : ξ ($1{,}6 \times 10^5$) = 3×10^{-10} cm^3 s^{-1}.

3) N_{ion} calculé en présence du mécanisme d'ensemencement du modèle LIBORS le plus efficace dans nos conditions expérimentales, soit l'ionisation associative de deux atomes dans l'état (3p) : $\xi_o = 4{,}7 \times 10^{-13}$ cm^3 s^{-1}.

4) Le rapport calculé du nombre des ions "secondaires" (ionisation par impact électronique) au nombre des ions "primaires" (ensemencement).

5) L'énergie moyenne des électrons calculés pour un taux effectif ξ ($\bar{I}$).

TABLEAU 8 - Comparaison entre valeurs expérimentales et valeurs calculées du nombre total d'ions N_{ion} pour deux intensités distinctes ; nombre d'ions calculé pour un taux d'ensemencement ξ_o ; énergie moyenne des électrons calculée ε_e.

n_o (cm^{-3})	$1,2 \times 10^{13}$	$4,4 \times 10^{13}$	10^{14}	3×10^{14}	6×10^{14}	$1,2 \times 10^{15}$
$I=1,6\times10^{5}$ W/cm^2						
N_{ion} (exp)	$5,3 \times 10^{7}$	$2,8 \times 10^{9}$	$4,8 \times 10^{10}$		$1,2 \times 10^{11}$	$6,4 \times 10^{11}$
N_{ion} (calc)	$5,3 \times 10^{7}$	1×10^{9}	$9,5 \times 10^{9}$	$1,2 \times 10^{12}$	3×10^{12}	6×10^{12}
N_{ion} (ξ_o)	$3,8 \times 10^{4}$	5×10^{7}	$2,8 \times 10^{8}$	10^{10}	4×10^{11}	6×10^{12}
$\frac{N_{ion}(2)}{N_{ion}(1)}$	1/100	0,4	3	40	60	100
ε_e (calc)	1. eV	2,45	2,53	2,4	2,2	1,86
$I=1,6\times10^{4}$ W/cm^2						
N_{ion} (exp)		$8,75\times10^{7}$	$3,37\times 10^{8}$		5×10^{9}	
N_{ion} (calc)	$4,18\times 10^{6}$	8×10^{7}	3×10^{8}	9×10^{10}	5×10^{11}	6×10^{12}

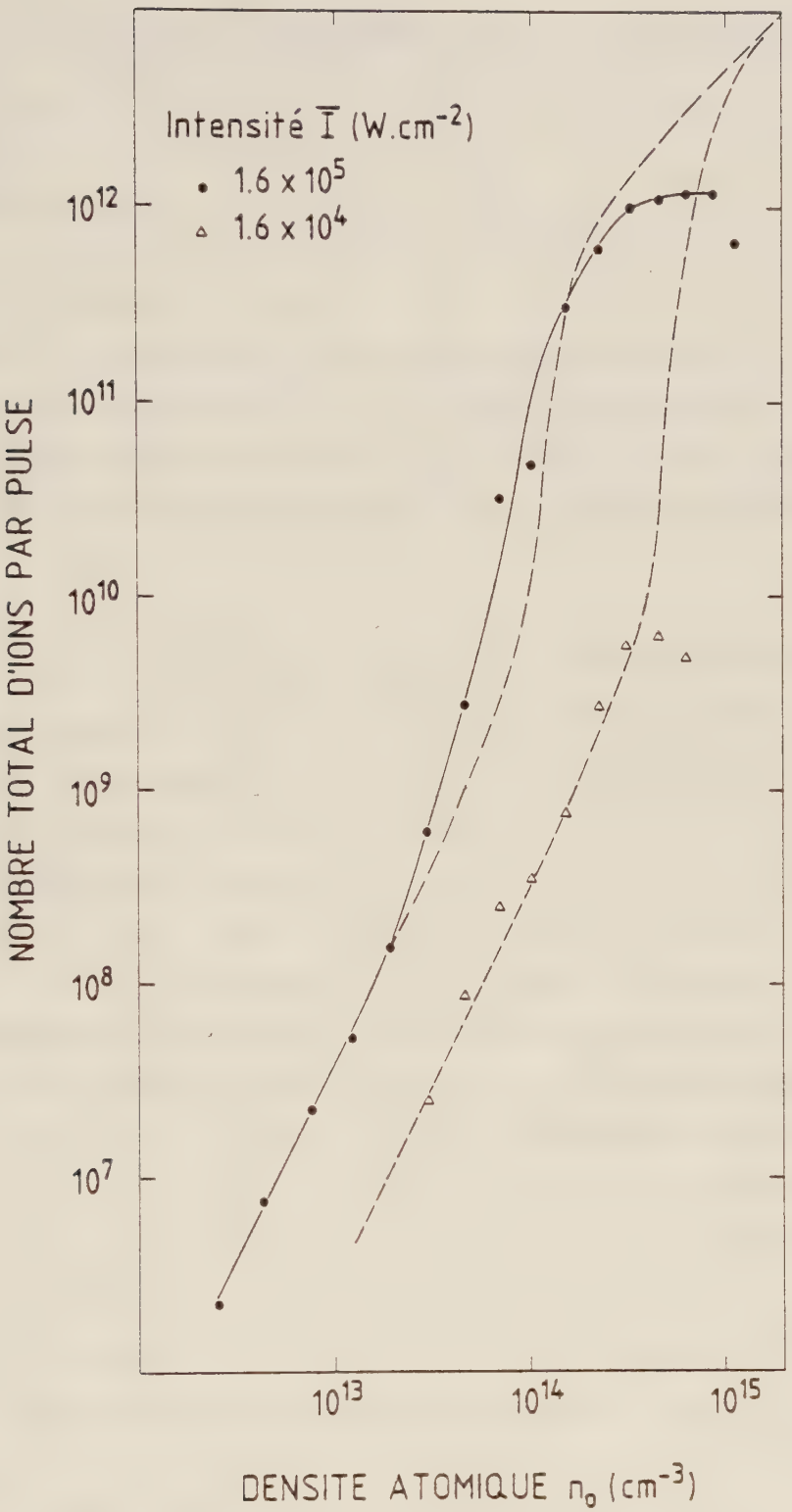


Figure 12 - Comparaison entre résultats expérimentaux et analyse quantitative. Les courbes en traits tiretés ont été calculées pour les intensités 1,6 x 10^5 W/cm^2 et 1,6 x 10^4 W/cm^2.

6) N_{ion} expérimental et N_{ion} calculé pour l'intensité :
$\bar{I} = 1,6 \times 10^{4}$ W/cm^2 , $\xi(\bar{I}) = 2,7 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1}.

Dans cette comparaison, on peut noter les points suivants :

a) Les collisions électron-atome contribuent de façon négligeable à l'ionisation quand $n_o < 10^{13}$ at/cm^3. Ce résultat a été utilisé en IV.B.3 où les collisions électron-atome ont été exclues des mécanismes possibles d'ionisation à faible densité.

b) La croissance très rapide de N_{ion} entre 10^{13} et 5×10^{14} at/cm^3 est un élément caractéristique du modèle et des résultats expérimentaux. Ce comportement, de type exponentiel, montre l'importance du phénomène d'avalanche (ionisation en chaîne). Le taux effectif $\xi(I) = 3 \times 10^{-10}$ cm^3 s^{-1} est requis pour représenter correctement les résultats quand $\bar{I} = 1,5 \times 10^{5}$ W/cm^2. Dans le cas de l'ionisation associative (3p + 3p), le nombre des ions calculés tombe d'un facteur 10^3 quand $n_o \sim 10^{13}$ cm^{-3} et d'un facteur 40 quand $n_o = 10^{14}$ cm^{-3}. On notera également que la courbe calculée quand $\xi = \xi_o$ ne se déduit pas par une simple translation de celle calculée quand $\xi = \xi(I)$. L'accord relatif entre analyse et résultats expérimentaux quand $n_o \leq 10^{14}$ cm^{-3} ne reflète donc pas purement la normalisation de $\xi(I)$ effectuée à plus faible densité. On vérifie ainsi à haute densité (région II) la cohérence de la détermination de ξ dans la région I.

c) L'ionisation totale est atteinte dans le modèle à partir de $n_o = 6 \times 10^{14}$ at/cm^3. L'apparente saturation de l'ionisation expérimentale et sa décroissance au-delà de 10^{15} at/cm^3 sont dues à la forte réduction du volume d'interaction dans la vapeur

dense qui absorbe le rayonnement avant la zone de détection, cf. III.B.4. L'absorption du rayonnement dans la vapeur dense est à nouveau mise en évidence par la comparaison des résultats de l'analyse et de l'expérience quand $I = 1,6 \times 10^4$ W/cm^2.

d) L'accord entre ε_e calculée et points expérimentaux n'est pas satisfaisant, même si la croissance rapide de ε_e entre 10^{13} et 10^{14} apparaît dans l'analyse. La décroissance observée de ε_e n'est pas expliquée par le modèle. On peut en conclure que l'équation d'évolution de ε_e qui néglige les phénomènes de diffusion et de nombreux phénomènes de transferts élastiques et inélastiques n'est pas appropriée à l'étude de la distribution d'énergie des électrons. On devra écrire l'équation de Boltzmann dans une analyse spatiale et temporelle plus complète. On rappelle également que l'échelle de temps de collection des électrons diffère (est inférieure) de l'échelle à laquelle est calculée l'évolution de ε_e (toute la durée de l'impulsion du laser, soit 1 µs). Analyse et résultats expérimentaux ne sont donc pas immédiatement comparables.

e) L'évolution temporelle calculée du nombre d'ions se compare raisonnablement à l'évolution mesurée, dans les limites des approximations du modèle (impulsion du laser constante dans le temps). Cet accord souligne la différence entre les régimes de haute densité (croissance exponentielle du nombre d'ions avec t, phénomène d'avalanche) et de faible densité (croissance linéaire du nombre d'ions avec t).

IV.E.4 - Analyse de la distribution en énergie des électrons dans une expérience récente

Une expérience récente (LE GOUËT et coll. / 5 /) a permis la mise en évidence directe d'électrons très chauds (4-6 eV) et des collisions superélastiques dans un jet effusif d'atomes de sodium ($n_o = 10^{13}$ cm^{-3}) excités à la résonance par un laser continu (~ 3 W/cm^2). Un analyseur en énergie (analyseur miroir

cylindrique), sensible dans la région (3-7 eV) résoud, avec une grande précision ($\Delta E/E = 0.01$) la distribution en énergie des électrons (entre 3 et 7 eV) qui diffusent hors du volume d'interaction.

Deux pics d'énergie respective $E_1 = 4,25$ eV et $E_5 = 6,35$ eV sont attribués à des électrons produits par ionisation associative :

$$Na(3p) + Na(3p) \rightarrow Na_2^+ + e \ (\varepsilon < 0,1 \text{ eV})$$

et ayant subi par la suite, respectivement deux ou trois collisions superélastiques :

$$Na(3p) + e \ (\varepsilon) \rightarrow Na(3s) + E \ (\varepsilon + 2,1 \text{ eV})$$

Trois pics sont également observés aux énergies respectives $E_2 = 4,80$ eV, $E_3 = 5,25$ eV, $E_4 = 5,45$ eV. Ils correspondent à des électrons produits dans une collision ionisante d'un atome dans les états très excités 3d, 5s, 4d avec un atome dans l'état 3p :

$$Na(nl) + Na(3p) \rightarrow Na^+ + Na(3s) + e^- \ (E_{nl} - 3,03 \text{ eV})$$

Ces électrons ont gagné à leur tour 4,2 eV dans deux collisions superélastiques.

Dans cette expérience où la densité électronique reste faible, les états nl ne sont pas produits par impact électronique à partir de Na(3p) mais par collision inélastique du type ("energy-pooling-collisions") :

$$Na(3p) + Na(3p) \rightarrow Na(nl) + Na(3s) + \Delta E_c$$

La fluorescence des états 3d, 4p, 5s, 4d, a été observée dans des conditions expérimentales semblables par ALLEGRINI et coll./ 20 /, BEARMAN et LEVENTHAL / 6 /. L'analyse du spectre de fluorescence a permis de conclure au peuplement préférentiel de ces niveaux par le mécanisme ci-dessus, suivi de cascades radiatives. Un accord satisfaisant a été obtenu entre le taux de

production des électrons aux diverses énergies, calculé à partir des sections efficaces connues et les valeurs expérimentales. L'analyseur en énergie, qui n'est plus sensible aux énergies < 3 eV, indique cependant la présence de pics très intenses dans la distribution en énergie correspondant aux électrons ayant subis une seule collision superélastique. Il en serait vraisemblablement de même aux énergies des électrons primaires.

Ces résultats montrent que l'on peut observer des collisions superélastiques dans un milieu atomique plus dense ($n_o \simeq 10^{13}$ at/cm^3) excité en régime continu. Ils confirment les ordres de grandeur des sections efficaces de collisions superélastiques utilisés dans notre analyse, qui ont conduit à un bon accord avec les résultats expérimentaux.

CONCLUSION

Nos résultats apportent une preuve expérimentale du rôle prépondérant des électrons "chauds" dans l'ionisation importante (> 10^{-3}) d'une vapeur de sodium dense (10^{13} - 10^{15} at/cm^3), par un laser résonnant intense (10^5 W/cm^2). Nous avons particulièrement souligné que l'ionisation de la vapeur se développe très rapidement dans le temps, atteignant presque l'ionisation totale au bout de 1 µs. La variation également très rapide du taux d'ionisation avec la densité atomique caractérise un régime "d'avalanche" de collisions électron-atome.

Dans les termes d'un modèle simplifié inspiré du modèle LIBORS développé par MEASURES, on a distingué trois phases dans l'évolution temporelle de l'ionisation à partir de la saturation initiale de la transition 3s-3p :

- une phase d'ensemencement qui libère dans la vapeur des électrons "primaires". L'observation de cette seule phase d'ensemencement, à faible densité (10^{12} - 10^{13} at/cm^3) a déterminé un taux effectif d'ionisation d'ensemencement.

- une phase de "chauffage" des électrons primaires par collisions superélastiques avec des atomes excités (3p), et de peuplement d'états hautement excités (nl) par impact électronique.

- une phase "d'avalanche" ou d'ionisation par impact électronique de différentes espèces atomiques excités dans la vapeur.

L'analyse numérique simplifiée des mécanismes confirme cette interprétation en mettant en évidence les traits caractéristiques suivants, observés expérimentalement :

- la croissance rapide de N_{ion} avec la densité n_o ;
- l'élévation de l'énergie moyenne des électrons dans la vapeur ;
- le développement temporel de type exponentiel du signal d'ions.

A faible densité, il a été possible de déterminer un taux effectif d'ionisation collisionnelle en fonction de l'intensité $\bar{I}$ du laser. Nous avons vérifié que ce taux effectif élevé est également requis pour amorcer un phénomène d'ionisation en chaîne dans la vapeur à haute densité ; l'ordre de grandeur de ξ est donc déterminé de manière univoque sur l'intervalle 10^{12} - 10^{15} at/cm^3.

Nous avons vu que l'interprétation de l'ionisation observée à faible densité garde un caractère hypothétique. Des développements expérimentaux, tels que l'analyse en masse des ions, l'étude de la distribution en énergie des électrons, sont envisagés, qui doivent permettre de distinguer et d'identifier ceux parmi les mécanismes cités qui sont dominants selon le domaine de densité atomique et de puissance lumineuse choisi.

APPENDICE 1

Calcul du taux de pompage de la transition 3s-3p

1 - La description du rayonnement a été annoncée en II.B le champ électrique est une somme de modes monochromatiques indépendants de la fréquence $\omega_{\pm i} = \omega_o \pm i\delta$ (δ = 200 MHz) d'amplitude constante E_i, de polarisation linéaire $\hat{\varepsilon}$.

On peut donc décrire le champ électrique uniforme dans la région d'interaction par :

$$\bar{E}(t) = \sum_i \frac{1}{2} E_i \hat{\varepsilon} \left(e^{i\omega_i t} + c.c\right)$$

L'intensité dans le mode (i) est modulée par l'enveloppe Gaussienne de largeur à mi-hauteur 70 GHz de la distribution spectrale d'intensité

$$I_i = I_o e^{-(i/\lambda)^2}$$

$$I_o = \frac{1}{\sqrt{\pi}\,\lambda} I \text{ (intensité totale du rayonnement)}$$

$$\lambda = 175/(\text{Log } 2)^{1/2}$$

2 - Le système atomique est un système à deux niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$:

$$|1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[|(3s)\ j = 1/2,\ m_j = 1/2\rangle + |(3s)\ = 1/2,\ m_j = -1/2\rangle \right]$$

$$|2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[|(3p)\ j = 1/2,3/2,\ m_j = 1/2\rangle + |(3p)\ j = 1/2,3/2,\ m_j = -1/2\rangle \right]$$

couplés par l'opérateur moment dipolaire :

$$\mu = - e r C_o^{(1)}$$

3 - Le formalisme utilisé a été développé par Mc ILRATH et CARLSTEN / 12 /. Nous utilisons des notations très semblables à celles de l'article cité.

4 - Développement du calcul. Il est habituel de décrire le système atomique à deux niveaux en interaction avec le rayonnement par son opérateur densité ρ. Les systèmes atomiques sont, au sein d'un gaz, soumis à des perturbations collisionnelles aléatoires qui affectent les cohérences, c'est-à-dire la "phase relative moyenne" de deux systèmes atomiques quelconques.

L'opérateur densité du système à deux niveaux est représenté dans la base $|f\rangle$, $|e\rangle$ par la matrice $\rho(t)$

$$\rho(t) = \begin{bmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{bmatrix} \qquad \rho_{11} + \rho_{22} = 1 \qquad \rho_{12} = \rho_{21}^*$$

Le Hamiltonien du système atomique est la somme du Halmiltonien H_A en l'absence de champ et du Hamiltonien d'interaction avec le rayonnement $H_{int} = - e \vec{r}.\vec{E}$.

La différence d'énergie entre les deux niveaux $|f\rangle$ et $|e\rangle$ est $E_2 - E_1 = \hbar\omega$, où ω est la fréquence d'absorption du système atomique pour une classe de vitesse particulière de la distribution Döppler. Nous pouvons considérer que ω relative à une classe de vitesse reste constante pendant l'interaction ; en effet la fréquence de collision avec transfert de moment peut être estimée approximativement par la formule $\sqrt{2} v \pi d^2 n_o$, $d = 3 \times 10^{-8}$ cm est le diamètre moyen d'un atome, $v = 7{,}5 \times 10^4$ cm s^{-1} la vitesse thermique moyenne des atomes, n_o la densité atomique.

Le temps caractéristique de collision avec transfert de moment reste donc supérieur ou de l'ordre de 10^{-6} s quand n_o est inférieure à 10^{15} cm^{-3}. Les classes de vitesse pompées par le laser ne sont donc pas renouvelées pendant l'impulsion du laser de 1 µs, il y a des "trous brûlés" par le laser dans la distribution des vitesses, les atomes gardant une fréquence d'absorption constante pendant l'interaction.

L'équation d'évolution de $\rho(t)$ a la forme générale :

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{1}{i\hbar}[H, \rho] + \left.\frac{d\rho}{dt}\right|_{\text{relaxation}}$$

$$H = H_A + H_{int}$$

Les temps de relaxation des populations et des cohérences sont respectivement T_1 et T_2. L'élargissement collisionnel estimé précédemment, inférieur à 3 MHz, reste négligeable devant la largeur naturelle de la transition : 62.5 MHz ; T_1 est donc essentiellement le temps de vie du niveau 3p, égal à 16 ns. T_2 est inférieur à T_1 mais voisin de T_1 en l'absence d'élargissement collisionnel important. Une borne inférieure de T_2 dans le domaine des moyennes pressions est $T_2 = T_1/10$ (SMITH / 13 /).

Nous introduisons les notations suivantes :

$$\sigma = \rho_{22} - \rho_{11}$$

$$V(t) = \langle 1 | -e\,\vec{r}\,.\,\vec{E} | 2 \rangle$$

Les équations d'évolution de σ et de ρ_{12} s'écrivent respectivement :

$$(1)\quad \frac{d\sigma}{dt} = \frac{2}{i\hbar}\left[V^{*}\,\rho_{12} - V\,\rho_{12}^{*}\right] - \frac{\sigma + 1}{T_1}$$

$$(2)\quad \frac{d\rho_{12}}{dt} = i\,\omega\,\rho_{12} + \frac{1}{i\hbar}\,V\,\sigma - \frac{\rho_{12}}{T_2}$$

$$(3)\quad \rho_{12} = \rho_{21}^{*}$$

La solution de l'équation (2) est formellement :

$$(4)\quad \rho_{12}(t) = \frac{1}{i\hbar}\; e^{-(1/T_2 - i\omega)t} \int_0^t e^{+(1/T_2 - i\omega)t'}\; V(t')\;\sigma(t')\;dt'$$

En remplaçant $\rho_{12}(t)$ par l'expression ci-dessus dans (1) on obtient :

$$(5)\quad \frac{d\sigma}{dt} = -\frac{2}{\hbar^2}\left\{ V(t)\,\exp\left[-(1/T_2 + i\omega)t \right] \right.$$

$$\left. \int_0^t \exp\left[(1/T_2 + i\omega)t' \right] V(t')\;\sigma(t')\;dt' + c.c \right\} - \frac{\sigma + 1}{T_1}$$

Explicitons :

$$V(t) = \frac{1}{2} \sum_i p_i\, E_i \left\{ e^{i\omega_i t} + e^{-i\omega_i t} \right\}$$

en posant : $p_i = -\,e < 1 \,|\, \vec{r}.\,\hat{\varepsilon}\,| 2 >$

L'expression de $\frac{d\sigma}{dt}$ devient alors dans l'approximation de l'onde tournante où l'on néglige les termes anti-résonnants du type $\exp\left[\pm i\,(\omega + \omega_i)\,t \right]$.

$$(6)\quad \frac{d\sigma}{dt} = -\frac{2}{\hbar^2} \sum_{i,j} \left\{ \frac{p_i p_j^{*}}{4}\, E_i\, E_j \int_0^t \mu_j^{*}\,(t-t')\;\sigma(t')\;dt'\; e^{i\omega_{ij}t} \right.$$

$$\left. + c.c \right\} - \frac{\sigma + 1}{T_1}$$

On a posé :

$$(7) \quad \mu_j(t) = \exp [-t/T_2] \, e^{i\Delta\omega_j t}$$

$$\Delta\omega_j = \omega - \omega_j$$

L'effet des termes croisés $\exp [i\omega_{ij}t]$ n'est sensible que sur des temps de l'ordre de $\frac{1}{\omega_{ij}}$, qui est au plus égal à $\delta^{-1} = 5 \times 10^{-10}$ s. Nous supposerons que σ varie peu sur des temps de l'ordre de 5×10^{-10} s de façon à pouvoir négliger les termes croisés dont la contribution se moyenne alors à zéro.

Nous pouvons reécrire l'équation (6) comme :

$$(8) \quad \frac{d\sigma}{dt} = - \frac{1}{2\hbar^2} \sum_i |p_i|^2 E_i^2 \left\{ \int_o^t \mu_i (t-t') \, \sigma(t') \, dt' + c.c \right\} - \frac{\sigma + 1}{T_1}$$

Il est relativement aisé de déterminer l'expression de la transformée de Laplace L (σ) (s) de la solution σ :

$$(9) \quad L(\sigma)(s) = \frac{- 1 - 1/(T_1 s)}{s + \frac{1}{2\hbar^2} \sum_i |p_i|^2 E_i^2 \left\{ \frac{2 (s+1/T_2)}{(s+1/T_2)^2 + (\Delta\omega_i)^2} \right\} + \frac{1}{T_1}}$$

L'inversion de L (σ) (s) requiert la connaissance des racines du dénominateur polynomial de degré 2N+1 où N est le nombre des modes (350), et n'est donc pas possible analytiquement.

Nous pouvons, par contre, connaître aisément la valeur de σ correspondant au régime stationnaire (pour t infini) et faire l'hypothèse que cette valeur est atteinte en un temps de pompage τ_p très inférieur au temps que dure l'impulsion du laser.

Cette hypothèse est vérifiée dans le cas d'un laser monomode d'intensité égale à la somme des intensités dans les modes, pour lequel le temps de pompage est de l'ordre de :

$$\tau_p = \left\{ \frac{|p|^2 E^2}{\hbar^2} T_2 \right\}^{-1}$$

- Application numérique

L'élément de matrice dipolaire $\langle 1 | H_{int} | 2 \rangle$ est égal à

$$\langle (3s)\ 1/2\ ;\ m_j\ |H_{int}|\ (3p)\ j'\ ;\ m_j \rangle$$

en l'élevant au carré, on a donc :

$$|p|^2 = e^2\ |\langle (3s)\ 1/2\ :\ m_j |\ r\ C_o^{(1)}|\ (3p)\ j'\ ;\ m_j \rangle|^2$$

$$= e^2\ |\ (3s\ |\ r\ |3p)\ |^2 \quad \theta^2_{j'}$$

Le coefficient angulaire se calcule aisément :

$$\theta^2_{1/2} = 1/9 \quad ; \qquad \theta^2_{3/2} = 2/9$$

l'élément de matrice radial est connu :

$$|(3s\ |r|\ 3p)| = 4.35\ \text{u.a.} \qquad \text{(GOUNAND / 30 /)}$$

Dans le système MKS, l'intensité totale I s'exprime en fonction du champ électrique E comme $I = c \frac{\varepsilon_o}{2} E^2$.

soit

$$\frac{|p|^2 E^2}{\hbar^2} T_2 = \frac{e^2}{4 \pi \varepsilon_o c \hbar} \frac{8\pi}{\hbar} |(3s\ |r|\ 3p)|^2 \quad \theta^2_{j'}\ T_2\ I$$

Dans le cas particulier où $j' = 3/2$ et $T_2 \sim T_1 = 16$ ns

$$\frac{|p|^2 E^2}{\hbar^2} T_2 = \eta T_2 I \qquad \eta = 6{,}83 \times 10^{14} \text{ cm}^2 \text{ J}^{-1} \text{ s}^{-1}$$

la valeur du temps de pompage τ_p pour une intensité $I = 10^3$ W/cm^2 est 10^{-12} s.

Sous l'hypothèse que τ_p multimode $<< \tau_{pulse}$, la valeur de σ pendant l'impulsion du laser est pratiquement stationnaire et peut être calculée comme

$$\lim_{s \to o} s\, L(\sigma)(s)$$

soit

$$(10) \quad \sigma(\infty) = \lim_{s \to o} s\, L(\sigma)(s)$$

$$= \frac{-1}{1 + \frac{1}{\hbar^2} \sum_i |p_i|^2 E_i^2 \frac{T_1 T_2}{1 + \Delta\omega_i^2 T_2^2}}$$

Estimons un ordre de grandeur de τ_p dans le cas multimode et pour la classe de vitesse de fréquence d'absorption ω.

D'après (9), la fonction $L(\sigma)(s)$ est le quotient de deux polynômes P/Q tels que deg P = 2 N+1 et deg Q = 2N+2 où N est le nombre des modes pris en compte dans la sommation. La transformée de Laplace inverse de $L(\sigma)(s)$ est alors une somme d'exponentielles $e^{-\alpha_K t}$ où les α_K sont les racines complexes distinctes ou non du polynôme Q. Les parties réelles de ces racines sont positives car σ tend vers une limite finie quand t tend vers l'infini.

Il est donc possible de représenter formellement la solution σ sous la forme :

$$(11)\quad \sigma(t) = \sigma(\infty) + \sum_K \beta_K e^{-t/\tau_K}$$

avec $\quad -1 = \sigma(o) = \sigma(\infty) + \sum_K \beta_K$

dans laquelle $1/\tau_K$ sont les parties réelles positives des α_K et les termes oscillants sont moyennés dans les β_K.

Nous définissons alors un temps de pompage τ_p de la manière suivante :

Soit la représentation approchée mono-exponentielle de σ :

$$(12)\quad \bar{\sigma} = (\sigma(o) - \sigma(\infty))\, e^{-t/\tau_p} + \sigma(\infty)$$

$s\,L(\bar{\sigma})(s)$ est $s\,L(\sigma)(s)$ ont même limite $\sigma(\infty)$ quand s tend vers zéro, l'égalité des développements limités de $s\,L(\bar{\sigma})(s)$ et $s\,L(\sigma)(s)$ au premier ordre en $s = 0$ détermine τ_p . Ceci revient finalement à calculer τ_p^2 comme la somme pondérée des τ_K^2

$$\tau_p^2 = \frac{\sum_K \beta_K \tau_K^2}{\sum_K \beta_K}$$

Le développement limité au premier ordre de $s\,L(\bar{\sigma})(s)$ au voisinage de $s = 0$ est

$$(13)\quad s\,L(\bar{\sigma})(s) \simeq \sigma(\infty) - (1 + \sigma(\infty))\,\tau_p\, s + o(s^2)$$

Afin de simplifier l'écriture de développement de $s\,L(\sigma)(s)$, nous posons :

$$a_i = \frac{1}{\hbar^2} |p|^2 E_i^2 T_1 T_2$$

$$b_i = \Delta\omega_i^2 T_2^2$$

$$x = T_1 s$$

$$\gamma = T_2/T_1$$

$$(14)\quad s\,L\,(\sigma)\,(s) = \frac{(x+1)}{1 + x + \sum_i a_i \dfrac{(\gamma x + 1)}{(\gamma x + 1)^2 + b_i}}$$

au premier ordre en $x = T_1 s$

$$(15)\quad s\,L\,(\sigma)\,(s) = -\frac{1}{1 + \sum \dfrac{a_i}{1 + b_i}}\,(1 + (1 - \chi)\,x)$$

$$(16)\quad \text{où } \chi = \frac{1}{1 + \sum \dfrac{a_i}{1 + b_i}}\,\left(1 + \gamma \sum_i \frac{a_i}{1 + b_i}\left(1 - \frac{2}{1 + b_i}\right)\right)$$

Nous simplifions l'expression de χ en considérant une fréquence d'absorption ω proche de la fréquence d'absorption des atomes au repos ω_o, pour laquelle le mode central contribue essentiellement à la somme sur i.

Nous écrirons la somme figurant au numérateur de χ comme

$$\left(1 - \frac{2}{1 + b_o}\right) \sum_i \frac{a_i}{1 + b_i} = \sum_i \frac{a_i}{1 + b_i}$$

car $b_o = 0$.

Nous pouvons alors exprimer χ en fonction de $\sigma\,(\infty)$

$$(17)\quad \chi = -\sigma\,(\infty)\,\left(1 + \gamma \frac{1 + \sigma\,(\infty)}{\sigma\,(\infty)}\right)$$

et la quantité $1 - \chi$

$$(18)\quad 1 - \chi = (1 + \sigma\,(\infty))\,(1 + \gamma)$$

L'égalité des coefficients de x dans les développements limités de $s\,L\,(\overline{\sigma})$ et $s\,L\,(\sigma)$ conduit finalement à l'équation déterminant τ_p :

(19) $\frac{\tau_p}{T_1} = - \sigma (\infty) (1 + \gamma)$

$\sigma (\infty)$ est négatif, égal à $\frac{n_{3p} (\infty) - n_{3s} (\infty)}{n_o}$.

Comme γ est toujours inférieur à 1 (T_2 au plus égal à T_1), on voir que τ_p est de l'ordre de $- T_1 \sigma (\infty)$. On retrouve, si l'on réduit la somme au seul mode central ω_o, l'expression du temps de pompage monomode.

Pour des atomes dont la fréquence d'absorption est voisine de ω_o, le temps de pompage est donc de l'ordre de celui calculé dans le cas monomode pour une intensité $\sim I/N$, N nombre de modes ; il est de l'ordre de 10^{-9} s pour une intensité totale $I = 10^3$ W/cm^2 et $T_1 = T_2$.

Cette estimation grossière du temps de pompage montre néanmoins qu'il est très inférieur à la durée de l'impulsion du laser, et l'on peut considérer que σ a une valeur constante égale à $\sigma (\infty)$ pendant l'interaction. Par contre, le temps de pompage τ_p peut être inférieur au temps d'interférence entre les modes $\sim 5 \times 10^{-10}$ s. Nous avons négligé ces phénomènes d'interférence en raison de la difficulté de traitement analytique exact. Cette approximation est a posteriori non justifiée.

- Intégration sur la distribution Doppler des fréquences d'absorption

La valeur stationnaire relative à une classe de vitesse doit être moyennée sur la distribution Doppler des fréquences d'absorption. La largeur Doppler varie peu avec la température et vaut 1,9 GHz.

La valeur moyenne de σ est l'intégrale :

$$(20) \qquad \langle\sigma\rangle = \frac{1}{\sqrt{\pi}\,\Gamma} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-(\omega-\omega_o)^2/\Gamma^2}\, \sigma(\omega)\, d\omega$$

$$(21) \qquad \sigma(\omega) = \sigma(\omega,\ t = +\infty)$$

$$= \frac{-1}{1 + \sum_i \frac{n\, I_i\, T_1\, T_2}{1 + \Delta\omega_i^2\, T_2^2}}$$

Γ est lié à la largeur Doppler $\Gamma = \frac{\omega_D}{2} (\text{Log } 2)^{-1/2}$.

Les résultats de ce calcul sont présentés sur la figure pour les deux valeurs de $T_2 = T_1$, $T_1/10$.

APPENDICE 2

Etude du courant d'ions

En III.C.2 nous avons fait l'hypothèse selon laquelle le courant d'ions total ($Na^+ + Na_2^+$) collecté entre les plaques, prenait sa valeur maximale à l'instant $t_o + \tau_{T.V}$; t_o est l'instant où l'intensité lumineuse est maximale, $\tau_{T.V}$ est le temps de vol moyen des ions jusqu'à la plaque collectrice.

Nous allons maintenant discuter brièvement cette hypothèse.

Géométrie de la collection des ions

Les ions formés sont accélérés entre les plaques distantes de 21 = 5 mm par un champ de 18 V/cm. Le temps moyen de collection d'un ion Na^+ formé au centre de la cellule est :

$$\tau_{Na^+} = \sqrt{\frac{1}{\Gamma}} \quad ; \quad \Gamma = \frac{1}{2} \frac{e V_o}{m_{Na^+} 21}$$

V_o = 9 V

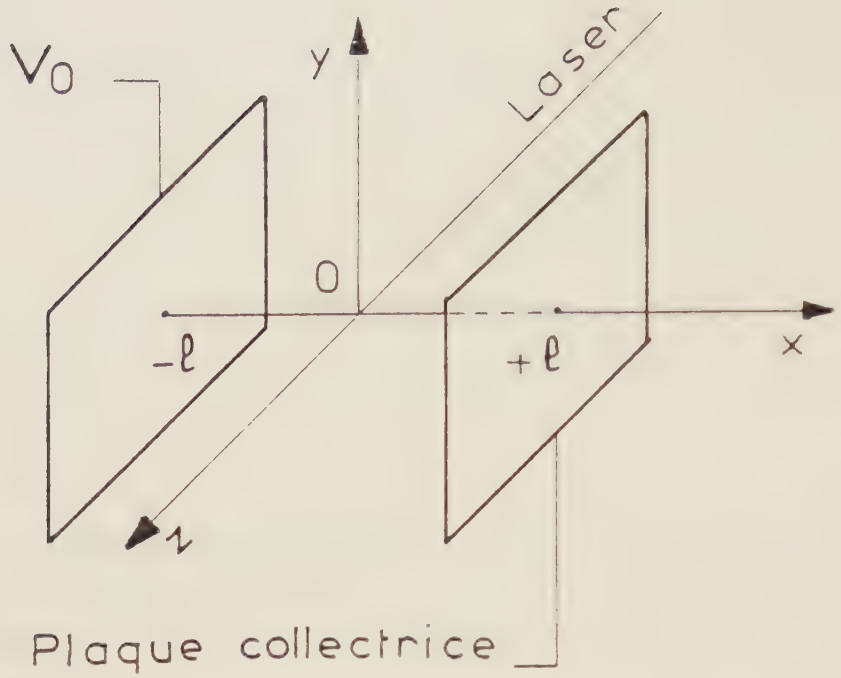
21 = 5 mm

$m_{Na^+} = 23 / \mathcal{N}_o$

$$\tau_{Na^+} = 2{,}58 \times 10^{-7} \text{ s}$$

de même $\tau_{Na_2^+} = 3{,}64 \times 10^{-7}$ s.

Nous confondrons les ions Na^+ et Na_2^+ en une seule classe d'ions extraits en un temps moyens $\tau_{T.V}$.



Considérons la géométrie rectangulaire x,y,z. L'axe z est l'axe du faisceau laser, l'axe x est l'axe du champ électrique collecteur. La d.d.p. de 9 V est appliquée entre les plaques d'abscisses -1, +1, le potentiel accélérateur varie linéairement avec x : $V(x) = V_o/2\ (1 - x/1)$. Dans cette géométrie, la symétrie cylindrique de la distribution spatiale d'intensité lumineuse autour de l'axe z est approchée par la distribution symétrique par rapport au plan yoz, uniforme en y :

$$(1) \quad I(r,t) \simeq I(x,t) = g(x)\, f(t)$$

$$g(x) = I_o\, e^{-\frac{2x^2}{r_o^2}}$$

- Expression du courant d'ions i(t')

Le nombre des ions formés dans le volume dv = Sdx entre les instants t et t+dt est :

$$(2) \quad S\, F(I(x,t))\, dx\, dt = \delta^2\, n(x,t)$$

La fonction F(I) est le terme de création des ions Na^+/Na_2^+, homogène à des $cm^{-3}.s^{-1}$. La fonction F est une fonction croissante de I. Les ions sont accélérés dans le potentiel V(x) ; la loi horaire de leur mouvement dans le potentiel est :

$$(3) \quad x' = x + \Gamma (t' - t)^2 \quad ; \quad \Gamma = \frac{1}{2} \frac{eV_o}{m\ (21)}$$

Les ions qui ont atteint l'abscisse +1 (la plaque collectrice) à l'instant t' sont au nombre de :

$$(4) \quad q(t') = \int_{x + \Gamma (t' - t)^2 > 1} \delta^2\ n\ (x,t)$$

q(t') est aussi la charge collectée jusqu'à l'instant t' sur la plaque d'abscisse +1.

L'explicitation du domaine d'intégration en x et t conduit à l'expression de q(t') :

$$(5) \quad q(t') = \int_{\psi(t')}^{+1} dx \int_o^{t' - \sqrt{\frac{1-x}{\Gamma}}} F\ (I\ (x,t))\ dt$$

où

$$\psi\ (t') = 1 - \Gamma\ t'^2 \quad \text{si} \quad t' < \sqrt{\frac{21}{\Gamma}}$$

$$\psi\ (t') = -\ 1 \quad \text{si} \quad t' > \sqrt{\frac{21}{\Gamma}}$$

L'intensité du courant d'ions instantanée i(t') est simplement : $i(t') = \frac{d}{dt'}\ q(t')$

$$(6) \quad i(t') \equiv \int_{\psi(t')}^{1} dx\ F\ (I\ (x,t' - \sqrt{\frac{1-x}{\Gamma}}))$$

Nous devons maintenant chercher la valeur maximale du courant i(t'). Soit t'_o l'instant du maximum de i(t') ; t'_o est certainement supérieur à t_o, instant du maximum de f(t) pour lequel $\psi\ (t_o) = -1$.

On cherchera donc t'_o maximisant l'expression :

$$(7) \qquad i(t') \equiv \int_{-1}^{+1} dx\ F\left(I\left(x, t' - \sqrt{\frac{1-x}{\Gamma}}\right)\right)$$

Nous chercherons une valeur approchée de t'_o sous les hypothèses suivantes :

- la contribution essentielle à l'intégrale i(t') est obtenue entre les bornes -a et +a, telles que $a/1 \ll 1$. Si on convient que a est de l'ordre de $r_o = 0{,}27$ mm dans notre expérience, $\frac{a}{1} \sim 1/10$.
- $\frac{a}{21} = \varepsilon$ est un infiniment petit de notre problème.

On peut faire alors un développement limité en puissance de $x = a\eta$, $-1 \leq \eta \leq +1$, des différentes fonctionnelles :

$$(8) \qquad \sqrt{\frac{1-x}{\Gamma}} = \sqrt{\frac{1}{\Gamma}}\left(1 - \frac{x}{21} + \frac{3}{2}\left(\frac{x}{21}\right)^2 + \ldots\right)$$

$$= \tau_{T.V}\left(1 - \varepsilon\eta + \frac{3}{2}\varepsilon^2\eta^2 + \ldots\right)$$

$\tau_{T.V} = \sqrt{\frac{1}{\Gamma}}$ est le temps de vol des ions créés en x = 0 jusqu'à la plaque collectrice d'abscisse +1.

Posons $t = t' - \tau_{T.V}$, $\Delta t = \tau_{T.V}\left(-\varepsilon\eta + \frac{3}{2}\varepsilon^2\eta^2\right)$

A l'ordre 2 en ε, l'argument de la partie temporelle de l'intensité f s'écrit $t + \Delta t$.

Développons $f(t + \Delta t)$ à l'ordre 2 en ε :

$$(9) \quad f(t + \Delta t) = f(t) + f^{(1)}(t)\,\Delta t + \frac{f^{(2)}}{2}(\Delta t)^2$$

$$= f(t) + f^{(1)}(t)\,\tau_{T.V}\,\varepsilon\,\eta$$

$$+ \left\{\frac{3}{2} f^{(1)}(t)\,\tau_{T.V} + \frac{\tau_{T.V}^2}{2} f^{(2)}(t)\right\}\eta^2\,\varepsilon^2$$

$$= f(t) + \Delta f$$

Développons $F\,(g\,(x)\,(f(t) + \Delta f))$ à l'ordre 2 en ε.

$$F\,(g(x)\,(f(t) + \Delta f)) = F^{(o)} + F^{(1)}\, g(x)\, \Delta f + \frac{F^{(2)}}{2}\, g^2(x)\, \Delta f^2$$

$$F^{(o)} = F\,(g(x)\, f^{(o)}(t))$$

$$F^{(1)} = \frac{dF}{dI}\,(g(x)\, f^{(o)}(t))$$

$$F^{(2)} = \frac{d^2F}{dI^2}\,(g(x)\, f^{(o)}(t))$$

soit

$$(10)\quad F\,(g(x)\,(f(t) + \Delta f)) = F^{(o)} - F^{(1)}\, g(x)\, f^{(1)}(t)\, \tau_{T.V}\, \eta\, \varepsilon$$

$$+ \left[F^{(1)} \left(\frac{3}{2}\, f^{(1)}\, \tau_{T.V} + \frac{\tau^2_{T.V}}{2}\, f^{(2)}\right) g(x) \right.$$

$$\left. + \frac{F^{(2)}}{2}\, f^{(1)2}\, \tau^2_{T.V}\, g^2(x) \right] \eta^2\, \varepsilon^2$$

Dans cette expression, le terme de premier ordre en ε est une fonction impaire de x dont l'intégrale entre -a et +a est nulle. Restent donc dans le développement de i(t'), les intégrales entre -a et +a des termes d'ordre 0 et 2 en .

Au voisinage de $t = t_o$, instant du maximum d'intensité lumineuse, la fonctionnelle $F^{(o)}$ croissante avec I, est maximale. Le courant i(t') est donc maximal à l'instant $t' = t_o + \tau_{T.V}$ correspondant au maximum de I.

Assurons-nous en effet qu'au voisinage de $t = t_o$ le terme de second ordre est négligeable devant l'ordre zéro.

Considérons pour cela le cas simple où

$$F\,(I(x,t)) \equiv I^n(x,t) \qquad n = 1,\ 2,\ 3,\ \ldots$$

on a alors :

$$F^{(o)} \equiv g^n\,(x)\ f^n\,(t)$$

$$F^{(1)} \equiv n\ g^{n-1}\,(x)\ f^{n-1}\,(t)$$

$$F^{(2)} \equiv n\,(n-1)\ g^{n-2}\,(x)\ f^{n-2}(t)$$

au voisinage de t_o, on admettra que $f^{(1)}(t) \simeq 0$.

L'ordre zéro s'écrit simplement : $F^{(o)}$

L'ordre 2 s'écrit simplement :

$$-\frac{n}{2}\ g^n\,(x)\ f^n(t)\ \frac{f^{(2)}(t)}{f^{(o)}(t)}\ \tau^2_{T.V}\ \eta^2\ \varepsilon^2$$

il s'agit donc de comparer $-\frac{n}{2}\ \frac{f^{(2)}(t)}{f^{(o)}(t)}\ \tau^2_{T.V}\ \eta^2\ \varepsilon^2$ et 1 au voisinage de $t \sim t_o$.

Nous choisirons pour f(t) une forme analytique représentant convenablement le profil temporel expérimental, qui va nous permettre de calculer $f^{(2)}(t)$.

Soit

$$f(t) = t\ e^{-bt^2} \qquad b = 2 \times 10^{12}\ s^{-2}$$

$$f^{(1)}(t) = e^{-bt^2}\ (1 - 2bt^2)$$

$$f^{(2)}(t) = 2bt\ e^{-bt^2}\ (2bt^2 - 3)$$

quand $t = t_o = \frac{1}{\sqrt{2b}}$ $\qquad \frac{f^{(2)}(t_o)}{f^{(o)}(t_o)} = 2b$

Le second ordre s'écrit donc :

$$\frac{n}{2}\, 2b\, \tau_{T.V}^{2}\, \varepsilon^{2} \simeq n\ 2 \times 10^{12}\ (3 \times 10^{-7})^{2}\ \frac{1}{20^{2}}$$

$$\simeq 4.5 \times 10^{-4}\ n$$

L'ordre 2 est négligeable devant l'ordre 0 en ε.

Le maximum du courant $i(t')$ est bien déterminé par le maximum de la fonctionnelle $F^{(o)}$ quand $t \sim t_o$.

L'intensité peut donc s'écrire :

$$i(t'_o) = \int_{-a}^{+a} dx\ F\ (g(x)\ f_{max}\ (t_o))$$

$$t'_o = t_o + \tau_{T.V}$$

obtenue en prenant pour $f(t)$ sa valeur maximale.

C'est l'hypothèse qui a été faite en III.C.2.

APPENDICE 3

Analyse simplifiée de l'ionisation par impact électronique

Un système simple d'équations d'évolution, très semblable dans sa forme à celui étudié par MEASURES et coll. / 2.b,c,d / décrit le système de six états : 3s, 3p, 3d, 4p, 5s, 4d. Ces quatre derniers états sont choisis en raison de l'importance relative des sections efficaces associées aux mécanismes de formation :

- par collision de deux atomes dans l'état 3p / 20, 5, 29 /,
- par impact électronique à partir de Na(3p).

Les paramètres de cette analyse sont essentiellement :

1) la densité des électrons n_e ;
2) les densités de population des états : 3s : n_1 ; 3p : n_2 ; 3d : n_3 ; 4p : n_4 ; 5s : n_5 ; 4d : n_6.
3) l'énergie cinétique moyenne des électrons ε_e ainsi que l'énergie cinétique moyenne transférée aux ions ε_i.

i) Saturation de la transition 3s-3p

La saturation de la transition 3s-3p par le laser résonnant intense, pendant toute la durée de l'interaction est inclus dans le modèle en écrivant :

$$(1) \qquad n_1 \equiv n_2 = \frac{1}{2} \left[n_o - (n_e + n_3 + n_4 + n_5 + n_6) \right]$$

Le rapport des deux populations est égal au rapport de leurs dégénérescences (1 dans le cas de la polarisation linéaire).

ii) Etape d'ensemencement

ξ (I) est le coefficient d'évolution associé au mécanisme d'ensemencement collisionnel, déduit des données expérimentales sur l'intervalle 10^{12} - 10^{13} at/cm^3.

ξ (I) = 3 x 10^{-10} cm^3 s^{-1} quand $\bar{I}$ = 1.6 x 10^5 W/cm^2

ξ (I) = 2.2 x 10^{-12} cm^3 s^{-1} quand $\bar{I}$ = 1.6 x 10^4 W/cm^2

l'énergie moyenne des électrons libérés est E_o = 0,8 eV.

iii) Etape intermédiaire

K_{12} (ε_e) et K_{21} (ε_e) sont les coefficients associés respectivement à l'excitation par impact électronique de la transition 3s-3p ; à la désexcitation superélastique de l'état 3p. Les sections efficaces correspondantes sont reliées par le principe de micro-réversibilité :

$$\sigma_{21}(\varepsilon_e) = \frac{g_1}{g_2} \frac{\varepsilon_e + E_{21}}{\varepsilon_e} \sigma_{12}(\varepsilon_e + E_{21})$$

- σ_{12} (ε_e) est déduit des données expérimentales de ENEMARK et GALLAGHER / 25 /. Cf. IV.E.3.

- K_{ij} (ε_e) et K_{ji} (ε_e) sont associés respectivement à l'excitation par impact électronique des transitions i → j ; à la désexcitation superélastique j → i.

  La dépendance de K_{ij} (ε_e) en fonction de ε_e est déduite de l'approximation de BORN / 14.a /. elle est normalisée par le rapport K^{exp}_{3s-3p} / K^{Born}_{3s-3p} connu à partir des résultats expérimentaux de ENEMARK et GALLAGHER. On considère uniquement les transitions ayant des forces d'oscillateur non nulles (optiquement permises).

On note E_{ij} les différences d'énergies :

$$E_{ij} = E_i - E_j$$

- $K_{E.P}^{(i)}$ est le coefficient de formation de l'état hautement excité " i " : (3d, 4p, 5s, 4d) par collision de deux atomes dans l'état 3p ("Energy pooling"). Sa valeur maximale est 10^{-10} cm^3 s^{-1} / 5 /.

- $\sigma_c^{(1)} \simeq 10^{-18}$ cm^2 (AYMAR et coll./ 31 /) est la section efficace de photoionisation des états 3d, 4p, 5s, 4d.

  . E_i^{ph} est l'énergie de l'électron éjecté

  $$E_i^{ph} = E_i + \hbar\omega - E\ (+) \quad \text{(seuil d'ionisation)}$$

  . F est le flux de photons

- A_{ij} est le coefficient d'émission spontanée de i vers j.

iv) Etape finale ou "avalanche"

- K_{ic} est le coefficient associé à l'ionisation de l'état : 3p, 3d, 4p, 5s, 4d, par l'impact électronique. Sa dépendance en fonction de ε_e est donnée sous la forme semi-empirique proposée par DRAWIN / 27 /.

$$\sigma_{ic}(\varepsilon_e) = 2.66\ \pi\ a_o^2 \left(\frac{E_H}{E_{ic}}\right)^2 \frac{y - 1}{y^2} \text{Log}\ (1{,}25\ y)$$

  . E_{ic} est le potentiel d'ionisation de l'état i :

  $$E_{ic} = E\ (+) - E_i$$

  . E_H est le potentiel d'ionisation de l'hydrogène :

  $$E_H = 13{,}6\ \text{eV}$$

  . $y = \varepsilon_e / E_{ic}$

v) Les équations d'évolution des densités n_e, n_3, n_4, n_5, n_6 sont respectivement :

$$(2)\quad \frac{dn_e}{dt} = \xi\, n_2^{\,2} +$$

$$\{ K_{2c}\, n_2 + K_{3c}\, n_3 + K_{4c}\, n_4 + K_{5c}\, n_5 + K_{6c}\, n_6 \}\, n_e$$

$$+ \sigma_c^{(1)}\, F \{ n_3 + n_4 + n_5 + n_6 \}$$

$$(3)\quad \frac{dn_3}{dt} = (K_{23}\, n_2 - K_{32}\, n_3)\, n_e + K_{E.P}(3)\, n_2^{\,2}$$

$$+ A_{43}\, n_4$$

$$- K_{3c}\, n_3\, n_e - A_{32}\, n_3 - \sigma_c^{(1)}\, F\, n_3$$

$$(4)\quad \frac{dn_4}{dt} = (K_{14}\, n_1 - K_{41}\, n_4)\, n_e + K_{E.P}(4)\, n_2^{\,2}$$

$$+ A_{64}\, n_6$$

$$- K_{4c}\, n_4\, n_e - (A_{41} + A_{43})\, n_4 - \sigma_c^{(1)}\, F\, n_4$$

$$(5)\quad \frac{dn_5}{dt} = (K_{25}\, n_2 - K_{52}\, n_5)\, n_e + K_{E.P}(5)\, n_2^{\,2}$$

$$- K_{5c}\, n_5\, n_e - \sigma_c^{(1)}\, F\, n_5$$

$$(6)\quad \frac{dn_6}{dt} = (K_{26}\, n_2 - K_{62}\, n_6)\, n_e + K_{E.P}(6)\, n_2^{\,2}$$

$$- K_{6c}\, n_6\, n_e - A_{64}\, n_6 - \sigma_c^{(1)}\, F\, n_6$$

vi) A ces équations s'ajoutent les deux équations d'évolution des énergies électronique ε_e et ionique ε_i moyennes. Un terme H_{ei}, dont la forme est donnée par MEASURES et coll. / 2.b /, décrit le transfert d'énergie cinétique par interaction Coulombienne des électrons vers les ions. Ce transfert reste faible ($\sim$ 0,1 eV après 1 µs quand $n_o \sim 10^{15}$ cm^{-3}).

$$(7)\quad \frac{d}{dt}\,(n_e\,\varepsilon_e) = \xi\,(I)\,n_2^{\,2}\,E_o$$

$$+\ \{\ (K_{21}\,n_2 - K_{12}\,n_1)\,E_{21} + (K_{32}\,n_3 - K_{23}\,n_2)\,E_{32}$$

$$(K_{41}\,n_4 - K_{14}\,n_1)\,E_{41} + (K_{52}\,n_5 - K_{25}\,n_2)\,E_{52}$$

$$+\quad (K_{62}\,n_6 - K_{26}\,n_2)\,E_{62}\ \}\,n_e$$

$$-\ \{\ K_{2c}\,E_{2c}\,n_2 + K_{3c}\,E_{3c}\,n_3 + K_{4c}\,E_{4c}\,n_4 +$$

$$+\ K_{5c}\,E_{5c}\,n_5 + K_{6c}\,E_{6c}\,n_6\ \}\,n_e$$

$$+\quad \sigma_c^{(1)}F\{\ E_3^{ph}\,n_3 + E_4^{ph}\,n_4 + E_5^{ph}\,n_5 + E_6^{ph}\,n_6\}$$

$$-\quad H_{ei}\,n_e^{\,2}$$

$$(8)\quad \frac{d}{dt}\,(n_i\,\varepsilon_i) = H_{ei}\,n_e^{\,2}$$

REFERENCES

1.a - LUCATORTO T.B., Mc ILRATH T.J., 1976. Phys. Rev. Lett. 37, 428.

b - Mc ILRATH T.J. and LUCATORTO T.B., 1977. Phys. Rev. Lett. 38, 139.

c - LUCATORTO T.B. and Mc ILRATH T.J., 1980. Appl. Opt. 19, 3948.

2.a - MEASURES R.M., 1977. J. Appl. Phys. 48, 2673.

b - MEASURES R.M., DREWELL N. and CARDINAL P., 1979. J. Appl. Phys. 50, 2662.

c - MEASURES R.M., CARDINAL P.G. and SCHINN G. En cours de publication.

d - MEASURES R.M. and CARDINAL P.G., 1981. Phys. Rev. A 23, 804.

3.a - ROUSSEL F., BREGER P., SPIESS G. and MANUS C., 1979. Proc. 11th Int. Conf. on Physics of Electronic and Atomic Collisions - ed. K. Takayanagi and N. Oda (Kyoto : Society for Atomic Collision Research). Abstracts p. 920.

b - ROUSSEL F., BREGER P., SPIESS G., MANUS C. and GELTMAN S., 1980. J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 13, L631.

c - CARRE B., ROUSSEL F., BREGER P. et SPIESS G., 1981. J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 14, 4271.

d - CARRE B., ROUSSEL F., BREGER P. et SPIESS G., 1981. J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 14, 4289.

4 - STACEWICZ T., 1980. Opt. Commun. 35, 239.

5 - LE GOUET J.L., PICQUE J.L., WUILLEUMIER F., BIZAU J.M., DHEZ P., KOCH P. et EDERER P. En cours de publication.

6 - BEARMAN G.H. and LEVENTHAL J.J., 1978. Phys. Rev. Lett. 41, 1227.

7 - POLAK-DINGELS P., DELPECH J.F. and WEINER J., 1980. Phys. Rev. Lett. 44, 1663.

8 - WEINER J. and POLAK-DINGELS P., 1981. J. Chem. Phys. 74, 508.

9 - TIEDE E., 1932. Ann. Physik, Ser. 5, 14, 937.

10 - LAPP M., HARRIS L.P., 1966. J. Quant. Spectros. Radiat. Transfer 6, 169.

11 - BORN M. et WOLF E., 1975. Principles of Optics (Pergamon Press), p. 470.

12 - McILRATH T.J. and CARLSTEN J.L., 1972. Phys. Rev. A6, 1091.

13 - SMITH R.A., 1979. Proc. R. Soc. Lond. A 368, 163.

14.a - GELTMAN S., 1981. Phys. Lett. 81A, 27.

b - GELTMAN S., 1969. Topics in atomic collision theory (Academic Press), p. 103.

15 - SALTER J.M., BURGESS D.D. and EBRAHIM N.A., 1979. J. Phys. B : Atom. Mol. Phys. 12, L 759.

16 - SPITZER L., 1959. Physique des Gaz Ionisés, Dunod, Paris, p. 86.

17 - SWIFT J.D. and SCHWAR M.J.R., 1971. Electrical Probes for Plasma Diagnostics (London : Iliffe Books), p. 76.

18 - CHEN F.F., 1965. Plasma Diagnostic Techniques (Academic Press), p. 113.

19 - DE JONG A. and VAN DER VALK F., 1979. J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 12, L561.

20 - ALLEGRINI M., ALZETTA G., KOPYSTYŃSKA A. and L. MOI, 1976. Opt. Commun. 19, 96.

21 - KOPYSTYŃSKA and KOWALCZYK P., 1978. Opt. Commun. 25, 351.

22 - SKINNER C.H., 1980. J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 13, 55.

23 - KRASINSKI J., STACEWICZ T. and STROUD C.R., 1980. Opt. Commun. 33, 158.

24.a - CHERET M., SPIELFIEDEL A., DURAND R. et DELOCHE R., 1981. J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 14, 3953.

b - CHERET M., LINDINGER W., BARBIER L. et DELOCHE R. En cours de publication.

25 - ENEMARK E.A. and GALLAGHER A., 1972. Phys. Rev. A 6, 192.

26 - MOORES D.L., NORCROSS D.W. et SHEOREY V.B., 1974. J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 7, 371.

27 - DRAWIN H.W., 1968. Plasma diagnostics. Ed. Lochte-Holtgreven (North-Holland), p. 846.

28 - LAUGHLIN C., 1978. J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 11, 1399.

29 - KUSHAWAHA V.S. and LEVENTHAL J.J., 1980. Phys. Rev. A, 22, 2468.

30 - GOUNAND F., Communication privée.

31 - AYMAR M., LUC-KOENIG E. and COMBET FARNOUX F., 1976. J. Phys. B : Atom. Molec. Phys. 9, 1979.